



Institut für Festkörperforschung

***Strukturbildung an Kristalloberflächen
unter elastischer Wechselwirkung***

Frank Gutheim

***Strukturbildung an Kristalloberflächen
unter elastischer Wechselwirkung***

Frank Gutheim

Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 4080

ISSN 0944-2952

Institut für Festkörperforschung Jül-4080

D 82 (Diss., Aachen, RWTH, 2003)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

☎ 02461/61-5220 · Telefax: 02461/61-6103 · e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de

Strukturbildung an Kristalloberflächen unter elastischer Wechselwirkung

Zusammenfassung

Aufgrund unterschiedlicher Gitterkonstanten von Adsorbat und Substrat kommt es bei der Erzeugung von Heterostrukturen durch epitaktische Prozesse zu einer elastischen Verspannung der beiden Komponenten. In der Homoepitaxie treten ebenfalls elastische Wechselwirkungen auf, deren Ursprung in den Inhomogenitäten der lokalen elektronischen Bindungen an Stufen und Adsorbatatomen liegt. Auf einer glatten Substrat- oder Adsorbatschicht äußern sich diese elastischen Verzerrungen in langreichweitigen Wechselwirkungen zwischen Stufen, Inseln und einzelnen Adatomen. Der Einfluss dieser langreichweitigen Wechselwirkungen wird hier in einem teilchenorientierten Modell der zweidimensionalen Oberfläche mit Hilfe von Monte-Carlo-Methoden studiert. Die Simulation wird durch den Einsatz eines speziell entwickelten neuen Multigrid-Verfahrens ermöglicht, das sowohl kurzreichweitige Wechselwirkungen als auch die Asymptotik der Abstandsabhängigkeit exakt behandelt, die Ordnung des Rechenaufwands jedoch deutlich reduziert.

Im Submonolagenwachstum führt eine repulsive r^{-3} -Wechselwirkung zwischen einzelnen Adatomen zu einer verzögerten Nukleationsphase. Im Grenzfall kleiner Bedeckungen wird eine neue Skalenrelation zwischen den Systemparametern aufgestellt, die das Systemverhalten auf universelle Funktionen zurückführt. Auf einfachen Kristalloberflächen führen elastische Effekte zu einer repulsiven r^{-2} -Wechselwirkung zwischen Stufen. Abhängig vom Verhältnis der Stärke der langreichweitigen Stufenwechselwirkung zur lokalen Stufenenergie kann die Aufrauungstemperatur der Oberfläche gegenüber einem rein lokalen Modell um mehr als einen Faktor drei erhöht sein.

Pattern Formation on Crystal Surfaces with Elastic Interaction

Abstract

Due to a mismatch between the adsorbate and the substrate the components of heteroepitaxial structures often are elastically strained. In homoepitaxy elastic interactions arise from inhomogeneities of the local electronic bonds near steps and adatoms. On flat substrates or adsorbate layers the elastic strain produces long-range interactions between steps, islands and single adatoms. Incorporating heteroepitaxial and homoepitaxial interactions into a particle based model the effects of long-range elastic interactions on two-dimensional surfaces are studied employing Monte-Carlo methods. The simulations are made possible by a new type of multi-grid scheme, which reduces the order of the computational costs. Short-range interactions are taken into account exactly. Long-range interactions are resolved only on a course-grained level but in a way that the correct asymptotics is reproduced.

In the limit of submonolayer epitaxy the elastic r^{-3} interaction between adatoms delays the process of island nucleation. In the low coverage limit a new scaling law is found, which reduces the behavior of the system to universal functions. On crystal surfaces elastic effects generate a repulsive r^{-2} interaction between steps. Depending on the ratio of step interaction strength and local step energy the roughening temperature of the surface can increase by more than a factor of three in comparison to a purely local model.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Elastische Eigenschaften von Adsorbaten und Substraten	5
2.1	Lineare Elastizitätstheorie	5
2.1.1	Verschiebungsfeld	5
2.1.2	Verzerrungstensor	6
2.1.3	Elastische Energie	7
2.1.4	Spannungstensor	7
2.1.5	Gleichgewichtsbedingung	8
2.1.6	Greensche Funktionen	10
2.1.7	Greensche Funktion des elastischen Halbraums	11
2.2	Elastische Wechselwirkungen auf Substraten	11
2.2.1	Homoepitaxie	11
2.2.2	Heteroepitaxie	15
2.3	Zusammenfassung	16
3	Fraktales Wachstum	17
3.1	Motivation	17
3.2	DLA mit elastischer Wechselwirkung	19
3.3	Wachstum einer fraktalen Cluster-Front	21
3.4	Zusammenfassung	27

4	Epitaktisches Wachstum im Submonolagen-Bereich	29
4.1	Motivation	29
4.2	Modellbeschreibung	30
4.3	Ergebnisse der Simulation	33
4.3.1	Monomer- und Inseldichten	33
4.3.2	Skalenanalyse ohne Wechselwirkung	37
4.3.3	Einbeziehung der Wechselwirkung	41
4.3.4	Grenzen der Analyse	44
4.4	Zusammenfassung	45
5	2+1-dimensionales Wachstumsmodell	47
5.1	Motivation	47
5.2	Wechselwirkung heteroepitaktischer Stufen	48
5.2.1	Zwei parallele Stufen	48
5.2.2	Stufen als Liniendefekte	50
5.2.3	Kraft-Monopol und assoziierter Kraft-Dipol	52
5.3	Wechselwirkung homoepitaktischer Stufen	53
5.3.1	Gleichgewichtsabstand von Stufen	56
5.4	Kombiniertes Modell	56
5.4.1	Modelldefinition	57
5.4.2	Wechselwirkende Kraft-Dipol-Dichten	57
5.4.3	Diskretisiertes Gitter-Modell	59
5.5	Zuordnung der Dipol-Ladungen	59
5.6	Grenzfälle	60
5.6.1	Einzelnes Adsorbatatom auf einem Substrat	61
5.6.2	Zwei Adsorbatatome auf einem Substrat	61
5.6.3	Zwei parallele Stufen auf einem Substrat	61
5.6.4	Einzelnes Adatom vor einer Stufe	67
5.7	Multigrid-Algorithmus	69
5.7.1	Algorithmus der Energieberechnung	70
5.7.2	Behandlung der Monopolwechselwirkung	71
5.8	Numerische Tests	73
5.8.1	h -Feld	74
5.8.2	q -Feld	76
5.8.3	Kombination von q -Feld und h -Feld	78
5.9	Zusammenfassung	79

6	Theorie des Aufrauungsübergangs	81
6.1	Motivation	81
6.2	Diskretes Gaußsches Modell	83
6.3	Abbildung auf das zweidimensionale Coulomb-Gas	84
6.4	Mean-Field-Approximation des zweidimensionalen Coulomb-Gases . .	86
6.5	Universelles Verhalten am kritischen Punkt	91
6.6	Zusammenfassung	92
7	Aufrauungsübergang mit elastischer Wechselwirkung	93
7.1	Motivation	93
7.2	Stufenwechselwirkung	94
7.3	Modellbeschreibung	96
7.4	Freie Energie einer Stufe	99
7.4.1	Effektive Parameter aus dem zweidimensionalen Modell	102
7.4.2	Kink-Wechselwirkung	103
7.4.3	Folgerungen	104
7.5	Aufrauung einer Oberfläche – Ergebnisse und Diskussion	105
7.5.1	Korrelationsfunktion des Höhenfeldes	105
7.5.2	Energieskalen	112
7.5.3	Mittlere Energie	114
7.5.4	Korrelation von Defekten	116
7.5.5	Linienenergie vs. Stufenwechselwirkung	117
7.6	Zusammenfassung	120
8	Ausblick	123
8.1	Grinfeld-Instabilität	123
8.2	Kinetische Aufrauung	126
9	Zusammenfassung	127
A	Clusteranalyse in hochdimensionalen Räumen	131
	Literaturverzeichnis	135

Kapitel 1

Einleitung

Das Verständnis von Prozessen an epitaktischen Oberflächen ist von fundamentaler Bedeutung für das Kristallwachstum und für die Herstellung von Halbleiter-Bauelementen. Bei diesen Prozessen geht es im einfachsten Fall darum, auf einer kristallinen Unterlage (Substrat) atomare Schichten kohärent aufwachsen zu lassen, welche die Struktur und Orientierung der Unterlage übernehmen. Das Aufbringen des Materials findet beispielsweise durch Kontakt der Oberfläche mit einer flüssigen oder gasförmigen Phase statt, aus der das aufwachsende Material (Adsorbat) stammt. Handelt es sich bei Adsorbat und Substrat um dasselbe Material, so spricht man von Homoepitaxie, andernfalls von Heteroepitaxie.

Aufgrund der meist unterschiedlichen Gitterkonstanten von Adsorbat und Substrat hat man es bei der Erzeugung von Heterostrukturen oft mit der Bildung von Versetzungen zu tun. Das Adsorbat wächst zunächst kohärent in einem elastisch verzerrten Zustand auf, versucht dann aber mit zunehmender Schichtdicke durch Fehler in der Kristallstruktur seinen Gleichgewichtsgitterabstand zu erreichen. Auf einer glatten Substrat- oder Adsorbatschicht äußern sich diese elastischen Verzerrungen in Wechselwirkungen zwischen Stufen, Inseln und einzelnen Adsorbatatomen. Auch in Homoepitaxie treten elastische Wechselwirkungen auf. Ihr Ursprung liegt jedoch in den Inhomogenitäten der lokalen elektronischen Bindungen entlang von Stufen und in der Umgebung von Adsorbatatomen. Die auftretenden elastischen Wechselwirkungen haben einen langreichweitigen Charakter.

Bei der Modellierung epitaktischer Prozesse wurden diese langreichweitigen elastischen Wechselwirkungen jedoch lange Zeit außer Acht gelassen, weil die Behandlung einer nichtlokalen Energetik numerisch zu aufwendig war. Bereitete es heute – mit welcher Methode auch immer – kein Problem mehr, die elastische Energie einer einzelnen speziellen Stufenkonfiguration zu berechnen, so sind die meisten Methoden jedoch immer noch ungeeignet, diese Berechnung mehr als 10^8 -mal in Folge für verschiedene Konfigurationen durchzuführen. Darüber hinaus besteht nach wie vor Bedarf an Ansätzen, wie über die erste Monolage hinaus mit elastischen Wechselwirkungen umzugehen ist. Als Folge hiervon gibt es, abgesehen von [1], nur sehr wenige Arbeiten zu zweidimensionalen Oberflächenmodellen mit langreichweitigen Wechselwirkungen.

In dieser Arbeit werden wir deshalb der Frage nachgehen, welchen Einfluss elastische Wechselwirkungen auf Prozesse der Strukturbildung an epitaktischen Oberflächen und auf die Gleichgewichtseigenschaften dieser Oberflächen haben.

Für die Modellierung der an diesen Oberflächen auftretenden Phänomene reichen im Allgemeinen die Methoden der klassischen statistischen Physik aus. Quantenmechanische Rechnungen können hierzu materialspezifische Kopplungskonstanten liefern. Allerdings sind quantenmechanische Rechnungen üblicherweise auf recht kleine Systeme mit lateralen Abmessungen von wenigen Atomen beziehungsweise kleine Periodizitätslängen beschränkt. Die Natur langreichweitiger Wechselwirkungen lässt sich mit diesen Methoden nur sehr schwer ergründen.

Abstraktere Modelle, bei denen die quantenmechanische Wechselwirkung durch Federn oder semi-empirische Potentiale ersetzt wird, belegen jedoch die Existenz von langreichweitigen elastischen Wechselwirkungen zwischen Stufen auf epitaktischen Oberflächen, die ihren Ursprung in einer sich über große Abstände fortpflanzenden Deformation des Kristalls haben. Auf der Skala der makroskopischen Kontinuums-theorie konnte mit Hilfe des Konzeptes von Punkt- und Liniendefekten in der linearen Elastizitätstheorie schon früh das Auftreten von Adatom- und Stufenwechselwirkungen begründet und deren Abstandsabhängigkeit vorhergesagt werden. Die aus der linearen Elastizitätstheorie abgeleitete Vorhersage deckt sich im Gültigkeitsbereich der gemachten Annahmen mit den Ergebnissen aus den semi-empirischen Modellen. Das Skalenverhalten der Wechselwirkung als Funktion des Abstandes ist hierbei unabhängig vom tatsächlichen Material. Die materialspezifischen Details schlagen sich lediglich in der Amplitude der langreichweitigen Wechselwirkung nieder.

Aus dem Experiment lassen sich die elastischen Wechselwirkungspotentiale nur schwer extrahieren. Macht man jedoch Annahmen über die Form der Abstandsabhängigkeit der Wechselwirkung zwischen Stufen, so lässt sich zum Beispiel aus der Verteilung der Stufenabstände an vizinalen Oberflächen die Amplitude der angenommenen Wechselwirkung berechnen. Insgesamt darf die prinzipielle Existenz von langreichweitigen elastischen Wechselwirkungen zwischen Objekten auf epitaktischen Oberflächen wohl als gesichert angenommen werden, auch wenn die materialspezifischen Amplituden nicht für alle erdenklichen Materialien bekannt sind.

Diese Arbeit verfolgt verschiedene Ansätze, um die oben genannten Probleme zu lösen. Zunächst erscheint die Reduktion des elastischen Problems auf ein zweidimensionales System zwingend notwendig. Jegliche Ansätze, die darauf basieren, das elastische Problem über die elastischen Deformationen des dreidimensionalen Kristallgitters zu lösen, sind schon aufgrund des enormen Speicherbedarfs zum Scheitern verurteilt. In einem zweidimensionalen Modell wird die elastische Energie auf eine immer gleiche Paarwechselwirkung zwischen lokal definierten Eigenschaften von Oberflächenelementen zurückgeführt. Dass dies nicht ohne Einschränkung des Gültigkeitsbereichs des Modells möglich ist, versteht sich von selbst. Um zum Beispiel mit einer konstanten Paarwechselwirkung rechnen zu können, muss die Oberfläche hinreichend glatt sein.

Auch mit diesen Vereinfachungen ist der Aufwand von Monte-Carlo-Simulationen ohne weitere Näherungen immer noch beträchtlich. Die Simulation hinreichend großer Systeme wird erst durch den Einsatz eines speziell entwickelten Multigrid-Verfahrens ermöglicht. Das Verfahren behandelt sowohl kurzreichweitige Wechselwirkungen als auch die Asymptotik der Abstandsabhängigkeit exakt und reduziert die Ordnung des Aufwands der Berechnung von Energiedifferenzen auf den Logarithmus der Systemgröße.

Mit der Integration von heteroepitaktischen und homoepitaktischen Effekten in ein einheitliches teilchenorientiertes Konzept sind wir erstmals in der Lage, den Einfluss langreichweitiger elastischer Wechselwirkungen an zweidimensionalen Oberflächen mittels Monte-Carlo-Methoden zu studieren. Damit eröffnet sich eine neue Möglichkeit, den Einfluss elastischer Effekte auf Prozesse der Strukturbildung im Nichtgleichgewicht, wie etwa die Inselbildung auf einem zunächst glatten Substrat beim epitaktischen Wachstum, wie auch den Einfluss elastischer Effekte auf Gleichgewichtsstrukturen, wie bei der thermischen Aufräumung einer Kristalloberfläche, zu studieren.

Der Inhalt der Arbeit gliedert sich wie folgt:

In **Kapitel 2** werden zunächst die grundlegenden Konzepte der linearen Elastizitätstheorie zusammengefasst. Auf der Lösung des elastischen Problems für einen Halbraum durch Greensche Funktionen aufbauend gehen wir dann auf das Konzept der Punkt- und Liniendefekte ein, deren Wirkung auf das Substrat sich durch Multipolmomente einer Kraftdichte ausdrücken lässt. Die so abgeleitete repulsive elastische Kraft-Dipol-Wechselwirkung zwischen einzelnen Adsorbat-Atomen auf einem glatten Substrat ist der Ausgangspunkt der beiden folgenden Kapitel.

Kapitel 3 zeigt den Einfluss der repulsiven elastischen Dipolwechselwirkung auf das Wachstum einzelner fraktaler Cluster aus Adsorbatatomen, die auf einer Kristalloberfläche diffundieren. Zentrale Punkte sind dann die Generierung einer neuen Längenskala durch die elastische Wechselwirkung und die Wachstumsgeschwindigkeit einer fraktalen Cluster-Front.

Kapitel 4 befasst sich mit dem Einfluss der repulsiven elastischen Wechselwirkung zwischen Adsorbatatomen auf den Prozess der Inselbildung beim epitaktischen Wachstum unter kontinuierlichem Depositionsfluss von Adsorbat-Atomen auf ein zunächst glattes Substrat. Gegenüber konventionellen lokalen Modellen kommt hier zu den Größen Depositionsfluss und Teilchenmobilität die Stärke der elastischen Wechselwirkung als weiterer Parameter hinzu. Die Statistiken der Anzahl von einzelnen diffundierenden Adsorbatatomen sowie der Anzahl unbeweglicher Inseln werden durch effektive Ratengleichungen beschrieben, welche durch skalentheoretische Überlegungen um die Effekte der elastischen Wechselwirkung erweitert werden. Die Existenz einer langreichweitigen repulsiven Wechselwirkung zwischen diffundierenden Adsorbatatomen verzögert den Prozess der Inselbildung, die Nukleationsphase wird in Richtung höherer Bedeckungen verschoben. Mithilfe einer neuen Skalenrelation, welche die drei Parameter des Systems verknüpft, kann das Verhalten des Systems für nicht allzu große Bedeckungen auf universelle Funktionen reduziert werden.

In **Kapitel 5** wird ein Modell entwickelt, welches homoepitaktische und heteroepitaktische elastische Wechselwirkungen über die erste Monolage von Adsorbatatomen hinaus beschreibt. Darüber hinaus wird das schon in der Simulation zu Kapitel 4 angewandte Multigrid-Verfahren vorgestellt, welches die Simulationen mit vielen unter langreichweitiger Wechselwirkung diffundierenden Adsorbatatomen ermöglicht. Das Verhalten des Modells wird zunächst an einigen beispielhaften Oberflächen-Konfigurationen analytisch, später dann auch unter Verwendung des Multigrid-Verfahrens numerisch verifiziert.

Als Vorbereitung auf die Anwendung des entwickelten Modells auf den thermischen Aufrauungsprozess einer homoepitaktischen Kristalloberfläche mit elastischer Stufenwechselwirkung in Kapitel 7 wird in **Kapitel 6** zunächst ein Abriss der Theorie des konventionellen Aufrauungsübergangs gegeben. Hierzu gehört das Verhalten des diskreten Gaußschen Modells sowie der Bezug zum gewissermaßen „dualen“ Modell, dem zweidimensionalen Coulomb-Gas, an dem die kritischen Eigenschaften des Kosterlitz-Thouless-Phasenübergangs aufgezeigt werden.

In **Kapitel 7** werden die Ergebnisse zur thermischen Aufrauung einer homoepitaktischen Oberfläche vorgestellt. Nach einer kompakten Darstellung des mit Monte-Carlo-Methoden behandelten Modells folgt zunächst eine Voruntersuchung zur freien Energie einer Stufe an einem eindimensionalen Modell. Dann werden die Ergebnisse der Simulation zum zweidimensionalen Modell der Oberfläche vorgestellt. Das Augenmerk liegt zunächst auf dem Verhalten der Höhenkorrelationen und dem hier verfolgten Ansatz zur Beseitigung von *Finite-Size*-Effekten. Gegenüber dem konventionellen Aufrauungsübergang kann die Übergangstemperatur durch die elastische Wechselwirkung stark erhöht sein. Antikorrelationen zwischen den Stufen verringern die Anzahl bevorzugter Konfigurationen, was durch eine höhere kritische Temperatur kompensiert werden muss. Ein Skalengesetz fasst durch elastische Effekte verursachte Abweichungen vom lokalen Grenzfall des Modells zusammen. Der Vergleich mit Rechnungen zur Stärke der elastischen Wechselwirkung an bestimmten Oberflächen legt nahe, dass es aller Wahrscheinlichkeit nach Oberflächen gibt, bei denen elastische Effekte im Hinblick auf den Aufrauungsübergang nicht zu vernachlässigen sind.

Kapitel 8 bietet einen Ausblick auf weitere Fragestellungen, welche sich mittels der hier entwickelten Methoden behandeln lassen. Dazu zählt insbesondere die Frage, in welcher Weise die Instabilität einer heteroepitaktischen Adsorbatschicht durch die Existenz einer repulsiven Stufenwechselwirkung beeinflusst wird.

Mit dem **Kapitel 9** erfolgt eine Zusammenfassung der Ergebnisse.

Ausgehend von den Erfahrungen mit den Cluster-Statistiken im Kapitel 4 ergab sich eine industrielle Kooperation mit der Firma Grüenthal mbH zur Identifizierung von Clusterstrukturen in hochdimensionalen Räumen. Die in diesem Zusammenhang auftretenden Probleme erfordern Konzepte, wie sie in der Physik typischerweise nicht verwendet werden. **Anhang A** gibt einen kurzen Überblick über diese Aktivitäten.

Kapitel 2

Elastische Eigenschaften von Adsorbaten und Substraten

In diesem Kapitel werden die Grundlagen für die Beschreibung der elastischen Wechselwirkungen zwischen Defekten auf einer Kristalloberfläche gelegt. In weiten Teilen ist eine einfache Beschreibung der auftretenden elastischen Effekte im Rahmen der Kontinuumstheorie möglich. Die Ergebnisse finden dann in späteren Kapiteln in einem Hybrid-Modell Anwendung.

2.1 Lineare Elastizitätstheorie

Im Folgenden werden zunächst die Grundkonzepte der linearen Elastizitätstheorie dargestellt, um anschließend auf die spezifischen elastischen Eigenschaften von Oberflächendefekten einzugehen.

2.1.1 Verschiebungsfeld

Die Elastizitätstheorie beschreibt die reversible Deformation eines festen Körpers aufgrund der Einwirkung von externen Kräften. Die Beschreibung basiert auf einem Verschiebungsfeld $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ mit Komponenten $u_i(\mathbf{r})$, welches die Verschiebung der Volumenelemente des Körpers im Vergleich zu einem Referenzzustand angibt, bei dem sich der Körper im Gleichgewicht befindet. Sieht man von einer möglichen Schwerpunktsbewegung oder Rotation ab, so nimmt der feste Körper seinen ursprünglichen Zustand wieder ein, sobald die auf ihn wirkenden Kräfte verschwinden. Die Deformation durch die Kräfte ist im Rahmen der nachfolgenden Betrachtung niemals irreversibel plastisch, sondern immer vollelastisch reversibel.

Das Verschiebungsfeld ist folglich ein Vektorfeld, das die Verschiebung eines Volumenelementes an der Stelle \mathbf{r} beschreibt. Das Volumenelement an der Stelle \mathbf{r} verändert

unter Krafteinwirkung seine Position zu $\mathbf{r}' = \mathbf{r} + \mathbf{u}(\mathbf{r})$. Durch die Angabe des Verschiebungsfeldes ist der Zustand der Deformation des Körpers vollständig beschrieben.

2.1.2 Verzerrungstensor

Ein Maß für die Verzerrung des Körpers ist die Änderung des Abstands zweier infinitesimal benachbarter Punkte. Der Abstandsbegriff ist eng mit dem metrischen Tensor des Raumes $g_{ij} = g_{ji}$ verbunden. Wir nehmen der Einfachheit halber ein kartesisches orthogonales Koordinatensystem $g_{ij} = \delta_{ij}$ an. Im Folgenden wird die Einsteinsche Summationskonvention verwendet, das heißt über in Produktausdrücken doppelt auftretende Indizes wird summiert. Damit ist die Länge l eines Vektors r_i gegeben durch $l^2 = r_j r_j$.

Sei nun dr_i der infinitesimale Abstand zweier Punkte im unverzerrten Zustand, so ist deren Abstand $(\delta l)^2 = dr_i dr_i$. Im verzerrten Zustand ändert sich der Abstandsvektor gemäß $dr'_i = dr_i + du_i$, und der Abstand ist gegeben durch $(\delta l')^2 = g_{ij}(dr_i + du_i)(dr_j + du_j)$.

Drückt man die infinitesimalen Verschiebungen über den Zusammenhang $du_i = \frac{\partial u_i}{\partial r_k} dr_k$ wieder in Koordinatendifferentialen aus, so ergibt sich

$$(\delta l')^2 = \left[\delta_{ij} + \frac{\partial u_j}{\partial r_i} + \frac{\partial u_i}{\partial r_j} + \frac{\partial u_k}{\partial r_i} \frac{\partial u_k}{\partial r_j} \right] dr_i dr_j. \quad (2.1)$$

Mit der Definition des Verzerrungstensors

$$u_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial r_j} + \frac{\partial u_j}{\partial r_i} + \frac{\partial u_k}{\partial r_i} \frac{\partial u_k}{\partial r_j} \right) \quad (2.2)$$

ist der lokale Abstand durch $(\delta l')^2 = (\delta_{ij} + 2u_{ij})dr_i dr_j$ gegeben, das heißt, man kann den Verzerrungstensor als lokale Korrektur zur Metrik des Raumes auffassen. Der in (2.2) definierte Verzerrungstensor ist mit $u_{ij} = u_{ji}$ symmetrisch. Sind die Ableitungen des Verschiebungsfeldes klein, so kann man den letzten Term in (2.2) vernachlässigen und der Verzerrungstensor wird linear im Verschiebungsfeld

$$u_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_j}{\partial r_i} + \frac{\partial u_i}{\partial r_j} \right). \quad (2.3)$$

Der hier definierte Verzerrungstensor $u_{ij}(\mathbf{r})$ beschreibt die relative Änderung von Abständen im Volumenelement des festen Körpers am Ort \mathbf{r} der Referenzbeschreibung.

Die Spur u_{ii} des Verzerrungstensors beschreibt die lokale Volumenänderung oder Dilatation, spurlose Anteile des Verzerrungstensors entsprechen einer Scherung des festen Körpers.

2.1.3 Elastische Energie

Im Rahmen der Referenzbeschreibung der Elastizitätstheorie kann die potentielle elastische Energiedichte w ein Funktional des Verschiebungsfeldes u_i sein. Da aber eine reine Translation die potentielle Energie im Allgemeinen nicht ändert, können nur die partiellen Ableitungen des Verschiebungsfeldes $\partial u_i / \partial r_j$ eine Rolle spielen. Es kommt also auf die relative Änderung von Abständen im Volumenelement an, nicht auf die absoluten Verschiebungen.

Die relative Änderung von Abständen wird jedoch durch den symmetrischen Verzerrungstensor vollständig beschrieben. Somit können die antisymmetrischen Anteile der partiellen Ableitungen, das heißt Ausdrücke wie $\partial u_i / \partial r_j - \partial u_j / \partial r_i$, keine Rolle spielen.

Ausgehend hiervon kann die elastische Energiedichte in Potenzen des Verzerrungstensors entwickelt werden. Der lineare Term muss hierbei verschwinden, da der Referenzzustand $u_{ij} = 0$ stationär ist. Die elastische Energiedichte ist also in niedrigster Ordnung gegeben durch

$$w(\mathbf{r}) \sim \frac{1}{2} A_{ijkl}(\mathbf{r}) u_{ij}(\mathbf{r}) u_{kl}(\mathbf{r}), \quad (2.4)$$

wobei $A_{ijkl} = A_{klij}$ angenommen werden kann. Ferner ist aufgrund der Symmetrie des Verzerrungstensors auch $A_{ijkl} = A_{jikl} = A_{jilk} = A_{ijlk}$. Behandelt man homogene Materialien, fällt die Ortsabhängigkeit von $A_{ijkl}(\mathbf{r})$ weg. Betrachtet man nur elastisch isotrope Materialien, sind die Möglichkeiten des Tensors A_{ijkl} weiter eingeschränkt. Es bleiben noch genau zwei frei wählbare Koeffizienten. Der Tensor A_{ijkl} lässt sich in diesem Falle aus den Komponenten $\delta_{ij}\delta_{kl}$ und $\delta_{ik}\delta_{jl}$ zusammensetzen.

In einer der vielen möglichen Parametrisierungen der elastischen Eigenschaften ist A_{ijkl} gegeben durch

$$A_{ijkl} = \frac{E}{1 + \sigma} \left[\delta_{ik}\delta_{jl} + \frac{\sigma}{1 - 2\sigma} \delta_{ij}\delta_{kl} \right], \quad (2.5)$$

wobei der Parameter E Elastizitätsmodul oder Youngscher Modul genannt wird und die dimensionslose Größe σ als die Poisson-Zahl bezeichnet wird. Der Elastizitätsmodul E gibt die relative Längenänderung eines unter Spannung stehenden Stabes an und ist positiv. Die Poisson-Zahl σ , welche das Verhältnis von Querkontraktion zur longitudinalen Dehnung angibt, kann aus Gründen der thermodynamischen Stabilität eines Materials nur im Bereich $-1 \leq \sigma \leq 1/2$ liegen. Für alle bekannten Materialien ist σ jedoch positiv. Es gibt kein Material, das auf eine Längsstreckung mit Ausdehnung in Querrichtung reagiert.

2.1.4 Spannungstensor

Zum Verzerrungstensor u_{ij} lässt sich eine thermodynamische verallgemeinerte Kraft σ_{ij} über

$$\sigma_{ij} = \frac{\partial w}{\partial u_{ij}} \quad (2.6)$$

definieren. Diese verallgemeinerte Kraft σ_{ij} wird Spannungstensor genannt. Aus der Symmetrie von u_{ij} folgt sofort, dass auch der Spannungstensor symmetrisch ist. Damit lässt sich das Differential der elastischen Energiedichte w wie

$$dw = \sigma_{ij} du_{ij} \quad (2.7)$$

schreiben. Dieser Zusammenhang gilt allgemein, auch wenn höhere Terme in der Entwicklung (2.4) berücksichtigt werden. Im Rahmen der quadratischen Näherung der elastischen Energie gilt dann das Hookesche Gesetz. Der Zusammenhang zwischen σ_{ij} und u_{ij} ist linear

$$\sigma_{ij} = A_{ijkl} u_{kl} \quad (2.8)$$

und im isotropen Fall durch

$$\sigma_{ij} = \frac{E}{1 + \sigma} \left[u_{ij} + \frac{\sigma}{1 - 2\sigma} \delta_{ij} u_{ll} \right] \quad (2.9)$$

gegeben.

Eine anschauliche Bedeutung bekommt der Spannungstensor σ_{ij} durch den linearen Zusammenhang

$$dF_i = \sigma_{ik} dS_k, \quad (2.10)$$

welcher eine Beziehung zwischen der Kraft dF_i auf das Flächenelement dS_k und dem Spannungstensor σ_{ik} herstellt. Deshalb ist der Spannungstensor von enormer Bedeutung für die Formulierung von elastischen Randbedingungen.

2.1.5 Gleichgewichtsbedingung

Aus dem Wirkungsprinzip lässt sich auf einfache Weise eine Bewegungsgleichung für die Volumenelemente herleiten. Aus der Stationarität dieser Bewegungsgleichung folgt die Gleichgewichtsbedingung der Elastostatik. Die kinetische Energie T ist durch die Geschwindigkeit \dot{u}_i und die Massendichte ρ der Volumenelemente

$$T = \int_{V(t)} dV \frac{1}{2} \rho \dot{u}_i \dot{u}_i \quad (2.11)$$

bestimmt. Im kräftefreien Fall ist die potentielle Energie allein durch die Verzerrungsenergie gegeben

$$U = \int_{V(t)} dV \frac{1}{2} \sigma_{ij} u_{ij}. \quad (2.12)$$

Befindet sich der feste Körper in einem äußeren Kraftfeld $g_i(\mathbf{r})$ (Kraftdichte pro Volumen), so muss die potentielle Energie um einen Term

$$- \int_{V(t)} dV u_i g_i \quad (2.13)$$

ergänzt werden. Das ist die vom Körper gegen das Kraftfeld geleistete Arbeit. Wirken auf die Oberfläche des Körpers zusätzlich Kräfte f_i (Kraftdichte pro Fläche), so kommt ein weiterer Term

$$- \int_{\partial V(t)} dS u_i f_i \quad (2.14)$$

hinzu. Die Wirkungsvariable S für das Zeitintervall t_0 bis t_1 ist damit

$$\begin{aligned} S &= \int_{t_0}^{t_1} dt \{T - U\} \\ &= \int_{t_0}^{t_1} dt \left\{ \int_{V(t)} dV \left[\frac{1}{2} \rho \dot{u}_i \dot{u}_i - \frac{1}{2} \sigma_{ij} u_{ij} + u_i g_i \right] + \int_{\partial V(t)} dS u_i f_i \right\}. \end{aligned} \quad (2.15)$$

Sieht man von Anlagerungsprozessen ab, die das Volumen $V(t)$ des Referenzzustandes des festen Körpers ändern, so ist V zeitlich konstant. Die Variation der Wirkungsvariablen ist dann durch

$$\begin{aligned} \delta S &= \int_{t_0}^{t_1} dt \left\{ \int_V dV [\rho \dot{u}_i \delta \dot{u}_i - \sigma_{ij} \delta u_{ij} + g_i \delta u_i] + \int_{\partial V} dS f_i \delta u_i \right\} \\ &= \int_{t_0}^{t_1} dt \left\{ \int_V dV \left[-\rho \ddot{u}_i + \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial r_j} + g_i \right] \delta u_i + \int_{\partial V} dS [f_i - n_j \sigma_{ji}] \delta u_i \right\} \end{aligned} \quad (2.16)$$

gegeben, wobei bei der partiellen Integration bezüglich der Zeit t verwendet wurde, dass die Variation $\delta u_i(t_0) = \delta u_i(t_1) = 0$ verschwindet. Da die Variation des Wirkungsintegrals verschwinden muss, $\delta S = 0$, folgt aus dem ersten Integral in Gleichung (2.16) die im Volumen des festen Körpers gültige Bedingung

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial r_j} + g_i = \rho \ddot{u}_i. \quad (2.17)$$

Aus dem zweiten Integral eine Bedingung für die Oberfläche, charakterisiert durch den Normalenvektor n_j

$$n_j \sigma_{ji} = f_i. \quad (2.18)$$

Die Elastostatik setzt nun voraus, dass die Beschleunigung \ddot{u}_i in Gleichung (2.17) verschwindet.

Mittels des Hookeschen Gesetzes lässt sich die Gleichgewichtsbedingung für die Spannungen (2.17) in eine Gleichung für die Verzerrungen u_{ij} oder direkt in eine Gleichung für die Verschiebungen $u_i(\mathbf{r})$

$$(1 - 2\sigma) \partial_j \partial_j u_i(\mathbf{r}) + \partial_i \partial_j u_j(\mathbf{r}) = -2 \frac{(1 + \sigma)(1 - 2\sigma)}{E} g_i(\mathbf{r}) \quad (2.19)$$

transformieren. Der Ausdruck ∂_j steht hierbei für die Ableitung $\partial/\partial r_j$. Alternativ lassen sich die hier in Komponentenschreibweise angegebenen Differentialausdrücke auch in Form von Operatoren als $\nabla^2 \mathbf{u}$ und $\text{grad div } \mathbf{u}$ schreiben.

Vielfach wird jedoch bei der Lösung von elastischen Problemen nicht von den Verschiebungsfeldern u_i ausgegangen, sondern eine Lösung in Form des Spannungstensors oder Verzerrungstensors gesucht. Hierbei ist zu beachten, dass ein Verzerrungstensor, der eine Lösung der Gleichgewichtsbedingung darstellt, sich nicht notwendigerweise aus einem Verschiebungsfeld ableiten lässt – und damit a priori keine Lösung des eigentlichen elastischen Problems sein muss. Um sicherzustellen, dass ein physikalisches Verschiebungsfeld existiert, muss der Verzerrungstensor u_{ij} zusätzlich der Kompatibilitätsbedingung

$$\frac{\partial^2 u_{ij}}{\partial r_k \partial r_l} + \frac{\partial^2 u_{kl}}{\partial r_i \partial r_j} = \frac{\partial^2 u_{ik}}{\partial r_j \partial r_l} + \frac{\partial^2 u_{jl}}{\partial r_i \partial r_k} \quad (2.20)$$

genügen. Es handelt sich hierbei um eine Integrabilitätsbedingung, die bedeutet, dass sich durch Integration der Verzerrungen ein Verschiebungsfeld gewinnen lässt.

2.1.6 Greensche Funktionen

Durch die Anwendung des Konzeptes der Greenschen Funktionen lässt sich ausgehend von Gleichung (2.19) die Antwort des Verschiebungsfeldes u_i auf eine vorgegebene Kraftdichte finden und damit das elastische Problem lösen.

Ist eine Greensche Funktion $G_{ij}(\mathbf{r})$, die Lösung der Gleichung

$$(1 - 2\sigma)\partial_k\partial_k G_{ij}(\mathbf{r}) + \partial_i\partial_k G_{kj}(\mathbf{r}) = -2\frac{(1 + \sigma)(1 - 2\sigma)}{E}\delta_{ij}\delta(\mathbf{r}) \quad (2.21)$$

bekannt, so kann das durch eine Kraftdichte $f_j(\mathbf{r})$ verursachte Verschiebungsfeld in der Form

$$u_i(\mathbf{r}) = \int d^3r' G_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') f_j(\mathbf{r}') \quad (2.22)$$

dargestellt werden. Das Symbol ∂_k steht hier wieder für die Ableitungen $\partial/\partial r_k$ nach den räumlichen Koordinaten. In dieser Darstellung lässt sich auch die elastische Energie U einfach über die verrichtete Arbeit $-u_i f_i$ berechnen. Es gilt

$$U = - \int d^3r u_i(\mathbf{r}) f_i(\mathbf{r}) = - \iint d^3r d^3r' G_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') f_i(\mathbf{r}) f_j(\mathbf{r}'). \quad (2.23)$$

Die Greensche Funktion hängt in komplizierter Weise von der Geometrie des betrachteten festen Körpers ab und ist nur für wenige einfache Fälle bekannt.

2.1.7 Greensche Funktion des elastischen Halbraums

Für einen isotropen elastischen Halbraum, das heißt den Bereich $r_z \leq 0$, ist die Greensche Funktion des Verschiebungsfeldes für eine auf die Oberfläche wirkende Kraft bekannt [2].

Um die elastische Energie (2.23) eines Halbraums zu berechnen, reicht jedoch die Kenntnis des Verschiebungsfeldes auf der Oberfläche aus, solange die Wirkung der Kraftdichte auf die Oberfläche beschränkt bleibt. Betrachtet man nur Verschiebungen auf der Oberfläche des isotropen elastischen Halbraums, so vereinfacht sich die Greensche Funktion zu [2]

$$G_{ij}(\mathbf{r})|_{r_z=0} = \frac{1+\sigma}{2\pi E} \frac{1}{r} \left[2(1-\sigma)\delta_{ij} + 2\sigma \frac{r_i r_j}{r^2} + (1-2\sigma) \frac{\delta_{iz} r_j - \delta_{jz} r_i}{r} \right]. \quad (2.24)$$

Diese Greensche Funktion ermöglicht es, Wechselwirkungsenergien zwischen Defekten auf einer Kristalloberfläche zu berechnen, solange alle relevanten Längenskalen klein sind gegenüber der Ausdehnung des Kristalls.

2.2 Elastische Wechselwirkungen auf Substraten

Nachdem die elastischen Grundgleichungen und Randbedingungen bekannt sind, kann man im Prinzip das elastische Problem mittels numerischer Verfahren [3–8], beispielsweise mit der Methode der Finiten Elemente, vollständig lösen, oder sich aber auf den Grenzfall makroskopisch kleiner Gradienten beschränken, für den nützliche analytische Näherungen bekannt sind [9–15].

2.2.1 Homoepitaxie

Im Fall der Homoepitaxie sind Adsorbat und Substrat aus demselben Material. Lagert sich das Adsorbat zudem kohärent an, so kann man auf die Unterscheidung zwischen Substrat und Adsorbat verzichten. Es handelt sich um eine Kristalloberfläche, die unter Umständen nicht glatt, sondern von einzelnen Atomen, Inseln oder Stufen bedeckt ist. Ist die Oberfläche hinreichend glatt, so agieren die Stufenkanten der Defekte auf makroskopischer Skala als Liniendefekte, die die Umgebung so verzerren, als ob an der Störstelle Kräfte an der Oberfläche angreifen, siehe Abbildung 2.1.

Ein gangbarer Weg, die elastischen Eigenschaften dieser Adatome, Inseln, Stufen und anderer lokalisierter Oberflächendefekte auf einem sonst ebenen Substrat zu charakterisieren, ist, ihre Wirkung auf das Substrat in Form einer Kraftdichte auszudrücken, die auf ein ebenes Substrat wirkt. Damit ist man in der Lage, Wechselwirkungsenergien mit Hilfe der Greenschen Funktion des elastischen Halbraums (2.24) über (2.23) zu berechnen. Sind diese Kraftdichten lokalisiert, so lassen sie sich – und damit auch die sie verursachenden Objekte – näherungsweise durch Multipole charakterisieren.

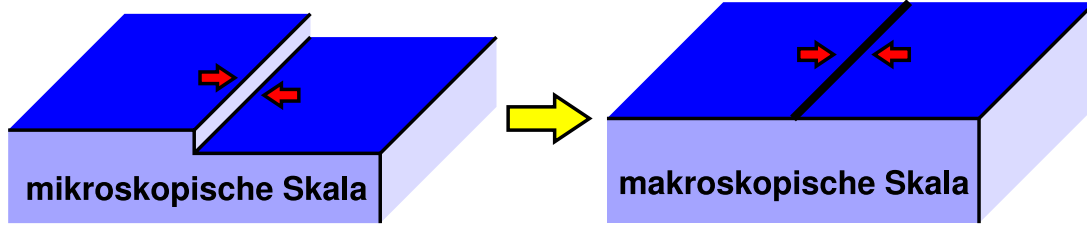


Abbildung 2.1: Idealisierung von homoepitaktischen Defekten: Auf makroskopischer Skala (rechts) ist die mikroskopische Stufe (links) nur ein Liniendefekt. Die an der Stufe auftretenden Verzerrungen können durch Kraftdichten in der Nähe des Liniendefektes ausgedrückt werden. Aus Symmetriegründen können nur Kraft-Dipolmomente an der Stufenkante wirken.

Hat man zwei um die Punkte r_i^A und r_i^B auf der Oberfläche lokalisierte Kraftdichten $f_i^A(\mathbf{r})$ und $f_i^B(\mathbf{r})$, so kann man für die Wechselwirkungsenergie eine Multipolentwicklung der Form

$$\begin{aligned}
 U^{AB} &= - \iint d^2r d^2r' f_i^A(\mathbf{r}) f_j^B(\mathbf{r}') G_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \\
 &= - \iint d^2r d^2r' f_i^A(\mathbf{r}) f_j^B(\mathbf{r}') \{ G_{ij}(\mathbf{r}^A - \mathbf{r}^B) \\
 &\quad + \partial_k G_{ij}(\mathbf{r}^A - \mathbf{r}^B) [(r_k - r_k^A) - (r'_k - r_k^B)] \\
 &\quad - \partial_k \partial_l G_{ij}(\mathbf{r}^A - \mathbf{r}^B) (r_k - r_k^A) (r'_l - r_l^B) + \dots \} \quad (2.25)
 \end{aligned}$$

durchführen. Da die Terme mit der Greenschen Funktion nur noch vom Relativabstand $\mathbf{r}^A - \mathbf{r}^B$ und nicht mehr von der Integrationsvariablen abhängen, ergeben sich durch Integration die Momente der Kraftdichten.

Mit der Definition des Kraft-Monopolmoments

$$M_i^{A/B} = \int d^2r f_i^{A/B}(\mathbf{r}) \quad (2.26)$$

und des Kraft-Dipolmoments

$$D_{ij}^{A/B} = \int d^2r (r_j - r_j^{A/B}) f_i^{A/B}(\mathbf{r}) \quad (2.27)$$

lässt sich die Energie durch die Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Multipolmomenten ausdrücken

$$U^{AB} = G_{ij}(\mathbf{r}^A - \mathbf{r}^B) M_i^A M_j^B \quad (2.28)$$

$$+ \partial_k G_{ij}(\mathbf{r}^A - \mathbf{r}^B) [M_i^A D_{jk}^B - D_{ik}^A M_j^B] \quad (2.29)$$

$$\partial_k \partial_l G_{ij}(\mathbf{r}^A - \mathbf{r}^B) D_{ik}^A D_{jl}^B. \quad (2.30)$$

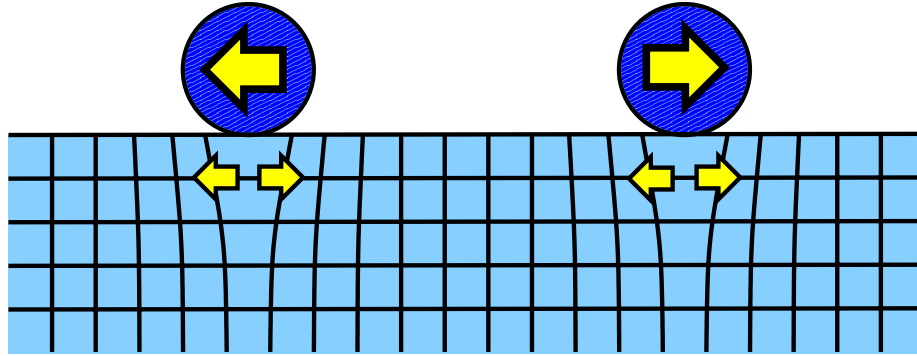


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Deformation des Substrats durch Adsorbatatome. In diesem Fall ist ein Auseinanderdrücken des Substrats gezeigt. Die Wirkung könnte aber auch genauso gut ein Zusammenziehen sein. Für identische Adsorbatatome entsteht eine langreichweitige repulsive Wechselwirkung, die durch elastische Kraft-Dipole beschrieben werden kann.

Der erste Term in Gleichung (2.28) ist die Wechselwirkung zwischen Kraft-Monopolen, die mit der gleichen Potenz des Abstandes $r = |\mathbf{r}^A - \mathbf{r}^B|$ abfällt wie die Greensche Funktion, also wie $1/r$. Aufgrund der auftretenden Ableitungen skalieren die Wechselwirkungen zwischen Dipol und Monopol (2.29) mit dem Abstand wie $1/r^2$ und die Wechselwirkung zwischen zwei Dipolen (2.30) wie $1/r^3$.

Elastische Monopole

Im einfachsten Fall entspricht ein elastischer Kraft-Monopol dem Vektor einer an einem einzelnen Punkt auf der Oberfläche angreifenden Kraft. Homoepitaktische Defekte sollten jedoch keine resultierende Gesamtkraft auf die Kristalloberfläche aufbringen können. So ist aus Symmetriegründen das Monopolmoment eines Adsorbatatoms gleich Null. Ebenso verschwinden elastische Monopole an Stufenkanten im Rahmen der Homoepitaxie. Erst im Rahmen der Heteroepitaxie sind Monopole von entscheidender Bedeutung.

Elastische Dipole

Die Wirkung eines einzelnen Adsorbatatoms auf ein Substrat kann durch ein Dipolmoment beschrieben werden. Aus offensichtlichen Gründen kann durch das Adsorbatatom keine resultierende Gesamtkraft auf das Substrat aufgebracht werden. Das Monopolmoment verschwindet. In führender Ordnung wird das Adsorbatatom folglich durch ein Dipolmoment beschrieben. Aus der Tatsache, dass ein einzelnes Adsorbatatom kein Drehmoment auf das Adsorbat aufbringen kann, folgt die Symmetrie des Dipoltensors $D_{ij} = D_{ji}$. Dann ist aber auch mit $0 = \int z f_i d^3r$ der Dipoltensor wegen

$D_{zi} = D_{iz} = 0$ auf zwei Dimensionen beschränkt. In diesem Fall ist das entsprechende Wechselwirkungselement $\partial_k \partial_l G_{ij}(\mathbf{r})$ gegeben durch

$$\partial_k \partial_l G_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{1+\sigma}{2\pi E} \left\{ 2(1-\sigma) \left[3 \frac{r_l r_k \delta_{ij}}{r^5} - \frac{\delta_{lk} \delta_{ij}}{r^3} \right] + 2\sigma \left[\frac{\delta_{lj} \delta_{ki} + \delta_{li} \delta_{kj}}{r^3} \right. \right. \\ \left. \left. - 3 \frac{\delta_{ik} r_l r_j + \delta_{jk} r_i r_l + \delta_{lj} r_i r_k + \delta_{li} r_j r_k + \delta_{lk} r_i r_j}{r^5} + 15 \frac{r_l r_k r_i r_j}{r^7} \right] \right\}. \quad (2.31)$$

Dieser Zusammenhang gilt streng genommen jedoch nur für $i, j, k, l \in \{x, y\}$. Es handelt sich nicht um die allgemeine Ableitung der Greenschen Funktion.

Mit der Forderung nach elastischer Isotropie des Adsorbatatoms sind auch die Diagonalelemente des Dipoltensors identisch, und für $\mu, \nu = x, y$ gilt $D_{\mu\nu} = D\delta_{\mu\nu}$. Die Größe D heißt Dipolmoment. Unter dieser Annahme vereinfacht sich der Ausdruck (2.31) erheblich. Es gilt

$$\delta_{lj} \delta_{ki} \partial_k \partial_l G_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{1-\sigma^2}{\pi E} \frac{1}{r^3}. \quad (2.32)$$

Unter diesen Voraussetzungen lässt sich die Wechselwirkungsenergie zweier elastischer Dipole im Abstand r auf dem halbinendlichen Substrat berechnen. Da die Deformationsenergie eine quadratische Form in den Verschiebungsfeldern ist, ergeben sich zwei vom Abstand r unabhängige Terme, die der Selbstenergie eines elastischen Dipols entsprechen, sowie ein vom Abstand r abhängender gemischter Term, die Wechselwirkungsenergie der zwei Dipole. Für identische Adsorbatatome [16, 17] findet man eine Wechselwirkungsenergie U_{int} mit

$$U_{int}(r) = \frac{U_0}{r^3} \quad \text{und} \quad U_0 = \frac{1-\sigma^2}{\pi E} D^2. \quad (2.33)$$

Die Wechselwirkung zwischen identischen Adatomen ist folglich immer repulsiv. Abbildung 2.2 skizziert die Wirkung der Adsorbatatome auf das Substrat und die hierdurch hervorgerufene Wechselwirkung. Diese langreichweitige elastische Wechselwirkung vernachlässigt jegliche Eigenschaften eines zu Grunde gelegten Gitters und geht vom Substrat als elastisches Kontinuum aus. Warum aber macht dies bei einem Gittermodell Sinn, bei dem die Kraftdichte auf der Skala eines Atomabstandes aufgebracht wird, einer Skala, auf der die Kontinuumsannahme sicherlich nicht mehr gerechtfertigt ist? Es ist offensichtlich, dass die Situation auf der Skala von wenigen Gittereinheiten anders aussieht als in (2.33) beschrieben. Es gibt wahrscheinlich eine Vielzahl von lokalen Korrekturen, die von den speziellen Gegebenheiten des Gitters und der lokalen Elektronendichte und anderen mikroskopischen Details abhängen. Auch im Rahmen der Kontinuumsnäherung gibt es Korrekturen von höherer Ordnung als das Dipolfeld. Unbeeindruckt von mikroskopischen Details ist jedoch die Dipolwechselwirkung der erste nicht verschwindende Term einer Multipolentwicklung eines sich makroskopisch ergebenden Verzerrungsfeldes. Dieser bestimmt für große Abstände das Verhalten der Wechselwirkungsenergie gegenüber Termen höherer Ordnung, unabhängig von der Wahl eines speziellen Substrats oder Adsorbats. Gleichermaßen ist die Forderung nach elastischer Isotropie des Adsorbatatoms gerechtfertigt,

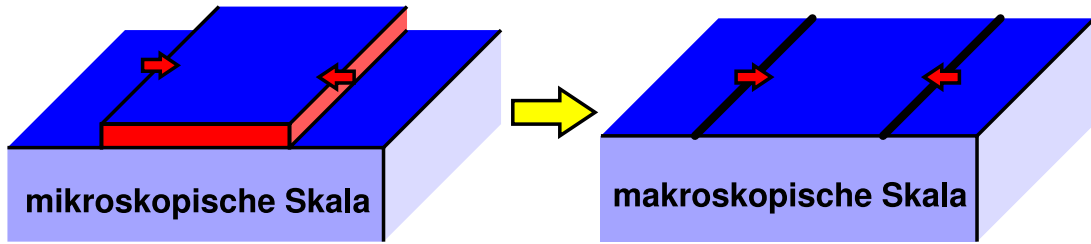


Abbildung 2.3: Idealisierung von heteroepitaktischen Defekten: Auf makroskopischer Skala (rechts) ist die mikroskopische Stufe (links) nur ein Liniendefekt. Die an der Stufe auftretenden Verzerrungen können durch Kraftdichten in der Nähe des Liniendefektes ausgedrückt werden. In diesem Fall greift an der Stufenkante ein Kraft-Monopolmoment an.

wenn nur universelle Systemeigenschaften Gegenstand der Untersuchung sind. Im Umfeld eines diskreten Modells, bei dem wir gezwungen sind, eine Gitterstruktur und damit eine Anisotropie einzuführen, würde die Winkelabhängigkeit nur eine zusätzliche Quelle von Anisotropie bedeuten, die das System weiter verkompliziert und an den universellen Systemeigenschaften vermutlich nichts ändert. Auch wenn neuere Untersuchungen über die Wechselwirkung von Defekten an dünnen Filmen [18, 19] zeigen, dass auch langreichweitigere Wechselwirkungen proportional zu r^{-2} auftreten können, so stellt dieser Fall starke Forderungen an die Winkelabhängigkeit der von den Adsorbatatomen aufgetragenen Kraftdichten. Wahrscheinlich dominiert deshalb in den meisten Fällen ein Term proportional zu r^{-3} das Verhalten.

2.2.2 Heteroepitaxie

In der Heteroepitaxie unterscheidet sich das Adsorbat vom Substrat und hat damit im Allgemeinen auch einen abweichenden Gitterparameter. Lagert es sich dennoch kohärent an, so liegt offensichtlich eine laterale Streckung oder Stauchung vor. Die auf das Substrat wirkenden Kräfte können als Kraft-Monopole idealisiert werden, deren Wechselwirkungsenergie sich im Sinne von Gleichung (2.28) berechnen lässt. Im Allgemeinen wird angenommen, dass an der Stufenkante keine Kräfte orthogonal zur Oberfläche wirken. Aus dem $1/r$ -Verhalten der Greenschen Funktion

$$G_{ij}(\mathbf{r})|_{r_z=0} = \frac{1+\sigma}{2\pi E} \frac{1}{r} \left[2(1-\sigma)\delta_{ij} + 2\sigma \frac{r_i r_j}{r^2} \right] \quad (2.34)$$

ergibt sich dann durch Aufintegration der Linienelemente eine logarithmische Wechselwirkung zwischen parallelen Stufen. Gleichnamige Stufen ziehen sich an. Bei ungleichnamigen Stufen ist die Wechselwirkung repulsiv. Details zur heteroepitaktischen Stufenwechselwirkung finden sich in Kapitel 5.2.2.

Ist die laterale Ausdehnung der Adsorbatschicht nicht sehr viel größer als die Dicke der Schicht, so ist die Approximation als Liniendefekt höchst fragwürdig. In diesem Fall muss man intensiver der Frage nachgehen, auf welche Weise die elastischen Verzerrungen an der Stufenkante in Richtung orthogonal zur Kristalloberfläche relaxieren. Wir verzichten an dieser Stelle auf eine weitergehende Diskussion und verweisen auf [20]. Einer der unbekannten Faktoren ist die Selbstenergie der Stufe, die sich letztlich nicht von der Linienenergie der Stufe trennen lässt. Elastische Verzerrungen haben einen nachweisbaren Einfluss auf die Stufenenergie [21].

2.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die Grundlagen der linearen Elastizitätstheorie vorgestellt und auf das Konzept der Linien- und Punktdefekte eingegangen.

Mit Gleichung (2.33) ergibt sich für Adsorbatatome auf einer Substratoberfläche eine effektive $1/r^3$ -Wechselwirkung. Sind Adsorbat und Substrat wie im Fall der Heteroepitaxie verschieden, so lässt sich die aufgebrachte Kraftdichte als Resultat des unterschiedlichen Gitterabstandes verstehen. In diesem Zusammenhang muss jedoch bemerkt werden, dass sich auch bei gleichem Gitterabstand eine Kraftdichte mit Dipolwirkung ergibt. Diese kann nur über die Störung der Elektronenstruktur der Substratoberfläche durch das Adsorbatatom verstanden werden und ist viel kleiner als im Fall der Heteroepitaxie. Das Konzept der einfachen Kraft-Dipol-Wechselwirkung zwischen Adatomen reicht auch bei fraktalen Inseln in der ersten Monolage auf dem Substrat aus. Die Implikationen von elastischen Effekten für das Wachstum im Bereich des so genannten Submonolagenwachstums werden in den folgenden Kapiteln 3 und 4 der Einfachheit halber auf Basis dieser hier ausreichend diskutierten Dipolwechselwirkung analysiert. Ein Konzept für Wechselwirkungen zwischen Adsorbatatomen aus verschiedenen Lagen wird im darauf folgenden Kapitel 5 erarbeitet.

Kapitel 3

Fraktales Wachstum

Aus diffundierenden Teilchen auf einer Oberfläche, die sich bei Kontakt aneinander anlagern, können verästelte, selbstähnliche Cluster-Strukturen entstehen. Dabei ist die Art der Struktur in gewisser Weise unabhängig von mikroskopischen Eigenschaften. Es ist also für die Struktur der Cluster unerheblich, ob es sich bei den Teilchen um einzelne Atome oder um komplizierte organische Moleküle handelt. Es ist vielmehr der Diffusionsprozess und das mit der Zufälligkeit der Anlagerung von Teilchen verbundene Rauschen, welches die fraktalen Strukturen erzeugt.

In diesem Zusammenhang stellt sich die Frage, ob die langreichweitige repulsive $1/r^3$ -Wechselwirkung zwischen Adsorbat-Atomen aus Kapitel 2 die makroskopischen Eigenschaften dieser Strukturen beeinflusst, oder ob es sich hierbei nur um ein weiteres mikroskopisches Detail handelt, dessen Wirkung auf einer makroskopischen Skala verschwindet.

3.1 Motivation

Niedrige Depositionsraten in Verbindung mit einer geringen Oberflächenmobilität führen zur Bildung von weit verzweigten, flachen Adsorbat-Clustern, solange die Bedeckung der Oberfläche klein bleibt. Dieser Prozess ist ausführlich unter dem Namen *Diffusion Limited Aggregation* (DLA) untersucht worden [22–25].

Das DLA-Modell ist in seiner Struktur einfach gehalten. Ein unbewegliches Adatom – der Keim für den Cluster – befindet sich an einer bestimmten Stelle auf dem zu Grunde liegenden Gitter. Nacheinander werden nun andere Adatome unendlich weit entfernt vom Keim auf die Oberfläche gesetzt und diffundieren, bis sie den Cluster berühren und selbst ein Teil des Clusters werden. Der Prozess der Anlagerung wird als irreversibel betrachtet. Ist das diffundierende Atom Teil des Clusters geworden, wird das nächste Adsorbatatom auf die Oberfläche gesetzt. In der einfachsten Realisierung werden Adatome an einem Start-Radius auf das zu Grunde gelegte Gitter gesetzt und durchlaufen einen *Random Walk*, bis sie in den Cluster eingebaut werden oder einen maximalen Abstand vom Cluster überschreiten und dann vom Gitter entfernt werden.

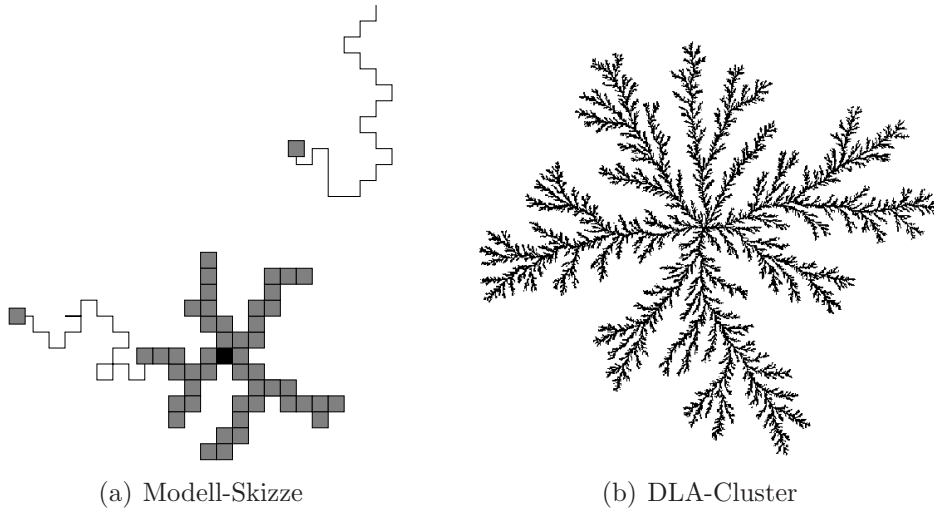


Abbildung 3.1: Das DLA-Modell und ein typischer DLA-Cluster.

Das Wachstumsmodell produziert verästelte, selbstähnliche Strukturen, welche sich über ihre so genannte fraktale Dimension charakterisieren lassen. Die fraktale Dimension eines Objektes kann mit dem *Boxcounting*-Verfahren, aus dem Verhalten des so genannten Gyration-Radius [26] oder aus der radialen Korrelationsfunktion bestimmt werden.

Für alle im Weiteren auftretenden praktischen Belange bedeutet dies, dass die durch

$$\Gamma(r) = \frac{\langle \rho(\mathbf{r}') \rho(\mathbf{r}' + \mathbf{r}) \rangle_{\mathbf{r}', |\mathbf{r}|=r}}{\langle \rho(\mathbf{r}') \rho(\mathbf{r}') \rangle_{\mathbf{r}', |\mathbf{r}|=r}} \quad (3.1)$$

definierte radiale Korrelationsfunktion des Clusters auf bestimmten Skalenbereichen einem Potenzgesetz der Form

$$\Gamma(r) \sim r^{d_{eff}-2} \quad (3.2)$$

genügt. Anhand des Exponenten kann der Struktur auf dem betrachteten Skalenbereich eine effektive fraktale Dimension d_{eff} zugeordnet werden. Bei DLA-Clustern bietet es sich an, alternativ zur Korrelationsfunktion die radiale Dichteverteilung $\rho(r)$ vom Ursprung des Clusters aus zu betrachten. Diese geht aus der radialen Korrelationsfunktion hervor, wenn man die Mittelung bezüglich des Offsets \mathbf{r}' weglässt und stattdessen nur den Erwartungswert der Dichte bezüglich des festen Ursprungs $\mathbf{r}' = 0$ betrachtet

$$\rho(r) = \langle \rho(\mathbf{r}) \rangle_{|\mathbf{r}|=r}. \quad (3.3)$$

Diese radiale Dichteverteilung weist ein identisches Potenzgesetzverhalten auf wie die Korrelationsfunktion.

Entgegen der anfänglichen Vermutung, DLA sei universal, ist die Struktur von DLA-Clustern offenbar nicht unabhängig vom Gittertyp, auf dem die Cluster entstanden sind. Insbesondere entspricht das Potenzgesetzverhalten nicht einer einheitlichen fraktalen Dimension d_f , sowohl im Vergleich verschiedener zu Grunde gelegter Gitter, als

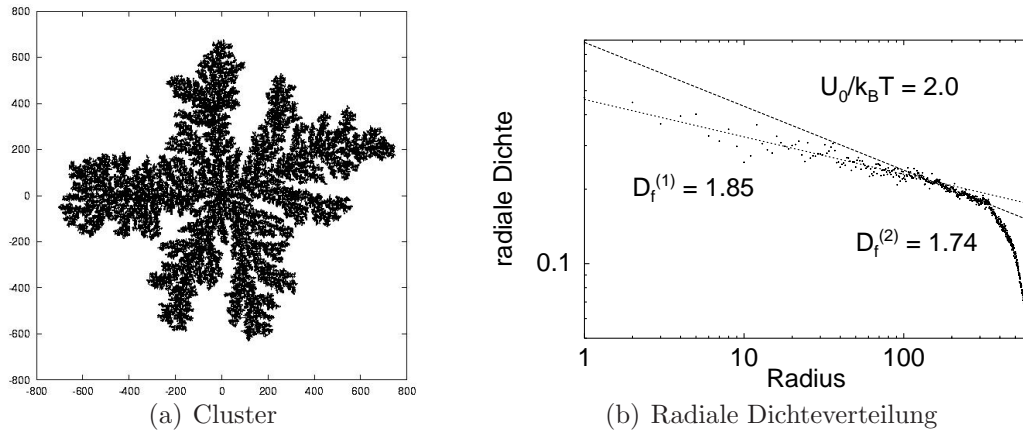


Abbildung 3.2: DLA-Cluster mit repulsiver Wechselwirkung und Crossover-Verhalten eines Cluster bei $U_0/T = 2$, entnommen aus [31]. Die lateralen Abmessungen sind als Vielfaches der Gitterkonstanten angegeben.

auch im Vergleich verschieden großer Cluster bei identischem Gitter. Es gibt Ansätze, von der Anisotropie des Gitters ausgehend eine asymptotische fraktale Dimension zu bestimmen. L. A. Turkevich und H. Scher [27] sagen für das Quadratgitter eine durch die Anisotropie bestimmte asymptotische fraktale Dimension von $d_f = 5/3$ voraus. Experimentell fand dieser Wert noch keine Bestätigung.

In Computersimulationen auf einem Quadratgitter wurde die effektive fraktale Dimension von Clustern der im Folgenden relevanten Größe bestimmt und mit $d_f = 1.695 \pm 0.002$ [24] angegeben. Eine Simulation ohne zu Grunde gelegtes Gitter [28] ergab eine fraktale Dimension $d_f = 1.715 \pm 0.002$. Es ist erwiesen, dass die fraktale Dimension von DLA entscheidend vom Gitter abhängt, auf dem das Modell definiert wird. Die Abhängigkeit der fraktalen Dimension von der Größe des Clusters und damit verbunden die Frage der Multifraktalität von DLA-Clustern ist jedoch nicht ganz geklärt [25, 29, 30].

3.2 DLA mit elastischer Wechselwirkung

Wie in Kapitel 2 gezeigt, lässt sich aus der Elastizitätstheorie ein isotropes Wechselwirkungspotential herleiten, über das Adsorbatatome durch elastische Deformation des Substrats miteinander wechselwirken. Die Wechselwirkungsenergie U zwischen zwei Adsorbatatomen hängt dabei nur vom Abstand r der beiden Adsorbatatome ab und ist gegeben durch

$$U(r) = \frac{U_0}{r^3}. \quad (3.4)$$

Vor dem Hintergrund, dass sowohl die Laplace-Gleichung als auch die elastische Wechselwirkung (3.4) keine intrinsisch gegebene Längenskala besitzen, stellt sich die Frage,

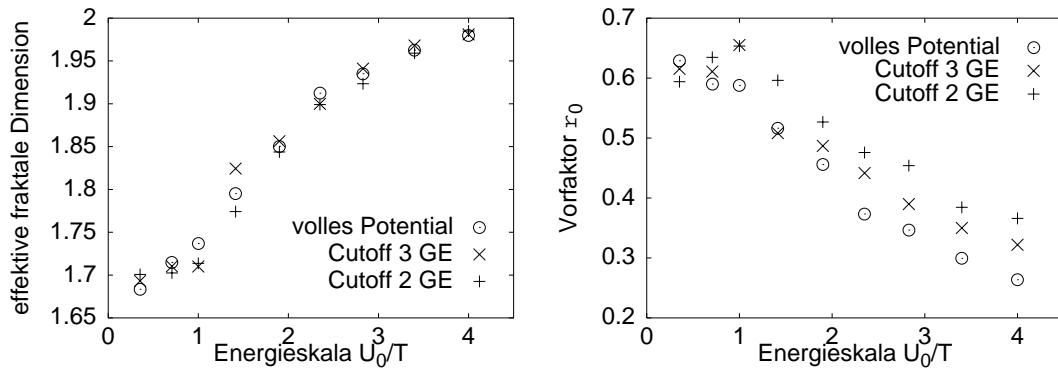


Abbildung 3.3: Abhängigkeiten der effektiven fraktalen Dimension, sowie des Vorfaktors der radialen Dichteverteilung im schwach fraktalen Bereich von DLA-Clustern, entnommen aus [31]. Der Cutoff ist in Gittereinheiten (GE) angegeben.

in welcher Weise die Anwesenheit dieser relativ langreichweitigen Wechselwirkung die Struktur der Cluster beeinflusst. Die Simulation mit repulsivem Potential von J. Steinbrecher [31] lieferte Cluster, siehe Abbildung 3.2(a), die auf den ersten Blick dichter sind als normale DLA-Cluster, wie in Abbildung 3.1(b) gezeigt. Dies macht sich in der Korrelationsfunktion bemerkbar, die im Bereich bis zu einer kritischen Länge einer höheren fraktalen Dimension entspricht, siehe Abbildung 3.3. Die effektive fraktale Dimension strebt mit stärker werdender Repulsion immer mehr gegen den Wert $d_f = 2$, d. h. der Cluster wird immer kompakter. Wie aus den Graphen ersichtlich ist, wurden auch die Auswirkungen einer endlichen Reichweite des Wechselwirkungspotentials untersucht.

Geht man zu größeren Clustern über, stellt man fest, dass die Korrelationsfunktion abknickt und oberhalb der charakteristischen Länge wieder der fraktalen Dimension von DLA ohne Wechselwirkung entspricht. Abbildung 3.2(b) zeigt das Verhalten der radialen Dichteverteilung. Unterhalb einer charakteristischen Länge ξ entspricht das Verhalten der in Abbildung 3.3 gezeigten effektiven fraktalen Dimension. Oberhalb der Länge ξ ergibt sich wieder ein Potenzgesetz mit einer fraktalen Dimension $d_f \approx 1.7$.

Das Erstaunliche ist, dass ein System ohne intrinsische Längenskala hier eine Cross-over-Länge generiert. Es ist zunächst nicht klar, wie diese Längenskala entsteht. Einen ersten Anhaltspunkt liefert die Vermutung, dass sich im Vergleich zu normalem DLA das Verhältnis der Wachstumsgeschwindigkeiten von exponierten Bereichen und dem Inneren des Clusters verändert. Wenn das Wachstum der Spitzen unterdrückt wird, spielt es eine größere Rolle, wie tief Adsorbatatome in den Cluster hineindiffundieren können. Wenn man sich die Topologie eines Clusters vor Augen führt, begrenzen Clusterarme eine von außen zugängliche zerklüftete Fläche, die wir deshalb hier als Fjord bezeichnen wollen. Ein Teilchen, welches sich nun am Eingang dieses Fjords befindet, wird durch die Repulsion der Clusterarme verstärkt in einen solchen Fjord

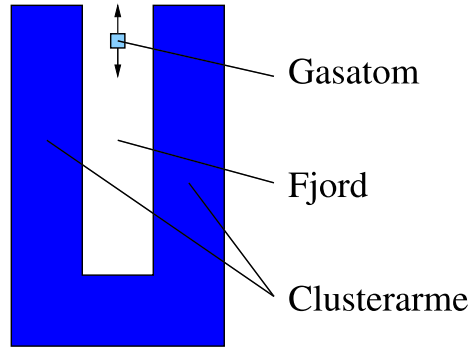


Abbildung 3.4: Generierung der Längenskala ξ durch eine repulsive Wechselwirkung.

hineindiffundieren. Diese Situation ist schematisch in Abbildung 3.4 verdeutlicht. In diesem Fjord ist die Diffusion in Richtung der Arme unterdrückt durch eine Energiebarriere \hat{U} . Es vergeht daher eine charakteristische Zeit $\tau \sim \exp(\hat{U}/T)$, bis das Gitter-Gas-Atom diese Barriere überwindet und sich an einen der beiden Clusterarme anlagert. Während dieser Zeit τ diffundiert das Teilchen entlang des Fjords und legt dabei im Mittel eine Strecke der Länge ξ mit $\xi^2 \sim \tau$ zurück. Daraus ergibt sich die mittlere Eindringtiefe in einen solchen Fjord zu

$$\xi \sim r_w \exp\left(\frac{\hat{U}}{2T}\right). \quad (3.5)$$

Macht man einfache Annahmen über die Energiebarriere $\hat{U} \approx 3.3U_0$ und die Breite der Fjorde $r_w \approx 5$, so stellt man fest, dass diese Längenskala ξ in der Größenordnung der Crossover-Länge liegt. Details hierzu finden sich in [31].

Der Mechanismus legt somit nahe, warum das Crossover-Verhalten in der radialen Dichteverteilung existiert. Das Wachstum der Spitzen ist gebremst, die Teilchen können tiefer in den Cluster eindringen, jedoch nur bis zu einer charakteristischen Länge ξ , die als mittlere Eindringtiefe verstanden werden kann. Eine detaillierte Untersuchung der Crossover-Länge ξ ist jedoch mit Schwierigkeiten verbunden, da sie exponentiell von der Wechselwirkungsstärke abhängt. Mit stärkerer Repulsion müssen auch exponentiell größere Cluster untersucht werden. Ist die Wechselwirkung schwächer, so ist der Crossover nicht zu lokalisieren, da sich die effektiven fraktalen Dimensionen zu wenig unterscheiden.

3.3 Wachstum einer fraktalen Cluster-Front

Während DLA-Cluster durch sukzessive Diffusion und Anlagerung von einzelnen Adatomen wachsen, berücksichtigt das auf [31] basierende Vielteilchen-Modell die Wechselwirkungen zwischen vielen gleichzeitig diffundierenden Adsorbatatomen und modelliert das Wachstum einer fraktalen Stufe auf dem Substrat. Von den Arbeiten

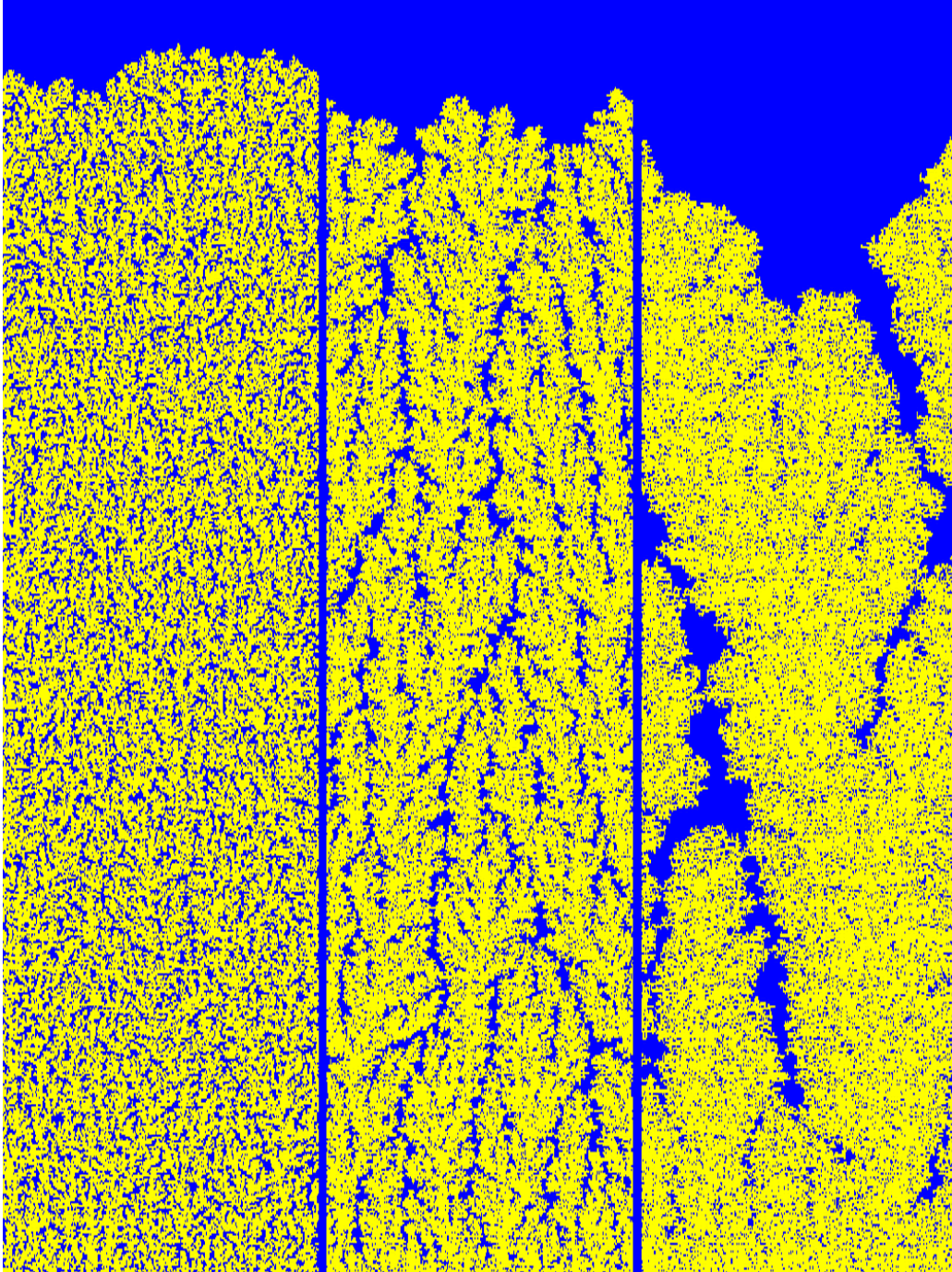


Abbildung 3.5: Fraktale Cluster, gewachsen aus einem Gitter-Gas der Dichte $n_g = 0.3$. Von links nach rechts nimmt die elastische Wechselwirkungsstärke zu. Die Kanalbreite beträgt $L = 1024$ Gittereinheiten [32].

von M. Uwaha und Y. Saito [33] ausgehend, werden hiermit die Eigenschaften des stationären Wachstums eines Clusters untersucht, der in einem Kanal der Breite L wächst. Weit entfernt von der Wachstumsfront wird dem aus einzelnen Adsorbatatomen bestehenden Gitter-Gas eine Dichte n_g fest vorgegeben. Vorarbeiten hierzu (z. B. Abbildung 3.5) wurden im Rahmen meiner Diplomarbeit [32] durchgeführt, die Skalenrelation (z. B. Abbildung 3.8) ist im Rahmen der gegenwärtigen Arbeit gefunden worden [34].

Dem System liegt wiederum ein zweidimensionales Quadratgitter zu Grunde. Die Adsorbatatome durchlaufen einen Random Walk, bis sie an ein Cluster-Atom stoßen und irreversibel in den Cluster eingebaut werden. Kollisionen von diffundierenden Adatomen bilden keine neuen Cluster-Keime. Gestartet wird mit einer Cluster-Linie an einem Ende des Wachstumskanals und einem auf dem Gitter zufällig verteilten Gitter-Gas. Der Cluster beginnt zu wachsen und vor dem Cluster bildet sich eine Verarmungszone aus.

Im stationären Regime rückt die Cluster-Front mit einer konstanten Geschwindigkeit V vor, welche mit stärker werdender elastischer Wechselwirkung abnimmt. Die entstehenden Cluster haben eine verzweigte Struktur und sind DLA-Clustern auf kurzen Längenskalen sehr ähnlich.

Aufgrund der Stationarität des Wachstums und der Materialerhaltung muss die mittlere Dichte des Clusters $n_s = \langle \rho(r) \rangle$ mit der vorgegebenen Dichte n_g des Gitter-Gases übereinstimmen. Deshalb kann die Struktur des Clusters auf großen Längenskalen nicht mehr fraktal bleiben. Die Clusterteilchen sind für große Abstände unkorreliert, und die normalisierte Dichte-Dichte-Korrelationsfunktion

$$\Gamma(r) = \frac{\langle \rho(\mathbf{r}') \rho(\mathbf{r}' + \mathbf{r}) \rangle_{\mathbf{r}'}}{\langle \rho(\mathbf{r}') \rho(\mathbf{r}') \rangle_{\mathbf{r}'}}$$

nähert sich einem Wert äquivalent zur mittleren Dichte des Gases n_g . Berücksichtigt man, dass sich die effektive fraktale Dimension des Clusters bei einer Längenskala ξ ändert, kann die Korrelationsfunktion abhängig vom relevanten Regime durch unterschiedliche Potenzgesetze charakterisiert werden, siehe Abbildung 3.6, und geht für Abstände größer als die Korrelationslänge R in eine Konstante über.

Das Skalenverhalten der Wachstumsgeschwindigkeit im Uwaha-Saito-Modell wird für geringe Dichten vom Verhalten der Korrelationsfunktion im Regime $\Gamma(\xi \ll r \ll R)$ bestimmt. Der Exponent ist recht gut bekannt, da er mit der asymptotischen fraktalen Dimension d_{DLA} von DLA verknüpft ist. Der Vorfaktor Γ_{DLA} hängt von der Stärke der elastischen Wechselwirkung U_0/T ab und steigt mit stärker werdender Repulsion an.

Kennt man den Vorfaktor Γ_{eff} und die auf kurzen Abständen erhöhte effektive fraktale Dimension d_{eff} sowie die Crossover-Länge ξ mit hinreichender Genauigkeit, so kann die Größe Γ_{DLA} aus der Anschlussbedingung für die beiden Potenzgesetze an der Stelle $\Gamma(r = \xi)$

$$\Gamma_{\text{DLA}} \left(\frac{\xi}{a} \right)^{d_{\text{DLA}}} = \Gamma_{\text{eff}} \left(\frac{\xi}{a} \right)^{d_{\text{eff}}} \quad (3.6)$$

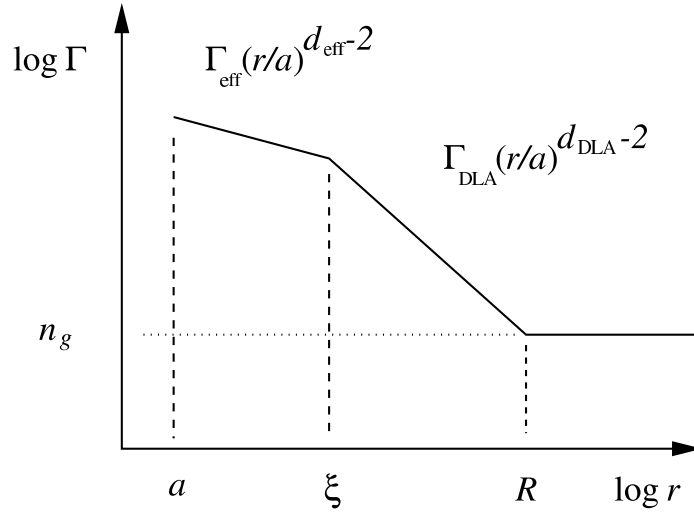


Abbildung 3.6: Skizze der radialen Korrelationsfunktion Γ eines Clusters. Die Korrelationsfunktion kann durch Potenzgesetze beschrieben werden und geht für große Abstände gegen eine Konstante, die von der gegebenen Dichte n_g abhängt.

bestimmt werden.

Da der Cluster mit einer stationären Geschwindigkeit wächst, ist er auf Längenskalen $r \gg R$ homogen und nimmt eine mittlere Dichte n_g an. Befindet man sich im Bereich $r \gg \xi$, so ist die Korrelationsfunktion durch

$$\Gamma(\xi \ll r \ll R) = \Gamma_{\text{DLA}} \left(\frac{r}{a} \right)^{d_{\text{DLA}}-2} \quad (3.7)$$

gegeben. Geht man zu größeren Abständen über, gilt

$$\Gamma(r \gg R) = n_g. \quad (3.8)$$

Letzteres ist der Fall, da die lokale Dichte in diesem diskreten Modell $\rho(r)$ einen der beiden Werte $\rho(\mathbf{r}) = 1$ oder $\rho(\mathbf{r}) = 0$ annimmt und die Korrelationsfunktion durch $\langle \rho^2(\mathbf{r}') \rangle_{\mathbf{r}'} = \langle \rho(\mathbf{r}') \rangle_{\mathbf{r}'} = n_g$ normiert wird, während sich die Korrelationen für große r wie $\langle \rho(\mathbf{r}') \rho(\mathbf{r}' + \mathbf{r}) \rangle_{\mathbf{r}'} \approx \langle \rho(\mathbf{r}') \rangle_{\mathbf{r}'} \langle \rho(\mathbf{r}') \rangle_{\mathbf{r}'} = n_g^2$ verhalten.

Der Übergang von fraktalem zu homogenen Verhalten definiert eine Längenskala R , die Korrelationslänge des Clusters. Das folgt aus den Gleichungen (3.7) und (3.8). Die Längenskala R hängt von der gegebenen Dichte des Gitter-Gases n_g gemäß

$$\frac{R}{a} = \left(\frac{n_g}{\Gamma_{\text{DLA}}} \right)^{\frac{1}{d_{\text{DLA}}-2}} \quad (3.9)$$

ab. Die skalierte Geschwindigkeit V/D_{eff} definiert dann die Diffusionslänge

$$l = \frac{D_{\text{eff}}}{V} \quad (3.10)$$

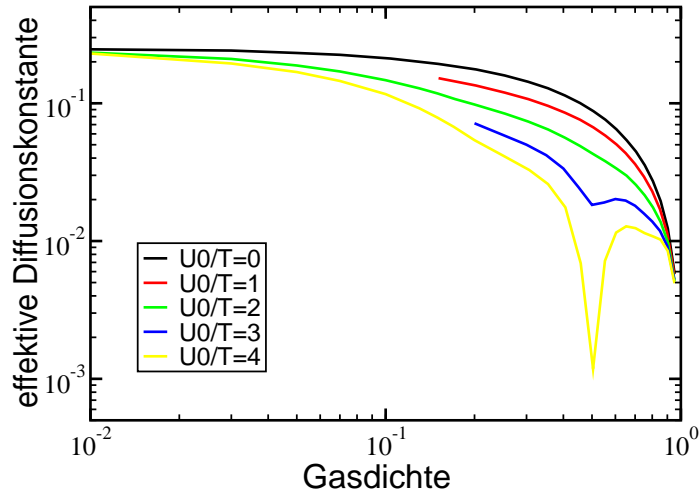


Abbildung 3.7: Effektive Diffusionskonstante D_{eff} als Funktion der Dichte berechnet aus der Autokorrelation eines Adatoms $D_{\text{eff}} = \langle (\mathbf{r}(t) - \mathbf{r}(0))^2 \rangle / (4t)$ für lange Zeiten t .

als charakteristische Länge der Verarmungszone vor der Cluster-Front. Man beachte, dass die Veränderungen in der Teilchenmobilität durch die effektive Diffusionskonstante D_{eff} berücksichtigt werden, welche im Limes geringer Dichte $n_g \rightarrow 0$ konstant wird, siehe Abbildung 3.7.

Das folgende Argument basiert auf der Annahme, dass die Crossover-Länge ξ für $R \gg \xi$ nur zu einer weiteren mikroskopischen Längenskala zusätzlich zur schon vorhandenen Gitterkonstanten a wird und deshalb keinen Einfluss auf das makroskopische Verhalten haben sollte. Der Skalenargumenten eigenen Logik folgend müssen die Längen R und l dann miteinander verwandt sein.

Das Diffusionsfeld vor der Front des wachsenden Clusters ist näherungsweise durch die Laplace-Gleichung gegeben. Diese entspricht dem stationären Grenzfall der Diffusionsgleichung. Dann wird das Diffusionsfeld durch die gewundene Front des Clusters gestört. In einem sehr groben Bild kann man für das folgende Argument von einer periodischen Störung der Wellenlänge $\lambda = 2R$ ausgehen. Eine solche Störung proportional zu $\cos(2\pi x/\lambda)$ wird dann exponentiell wie $\exp(-2\pi z/\lambda)$ in das Innere des Gases hinein relaxieren. Mit der Definition der Diffusionslänge l , siehe Gleichung (3.10), gilt dann $l \sim \lambda/2\pi$ und damit $l = R/\pi$. Hieraus folgt sofort

$$\frac{V}{D_{\text{eff}}} \sim \pi \left(\frac{n_g}{\Gamma_{\text{DLA}}} \right)^{\frac{1}{2-d_{\text{DLA}}}}. \quad (3.11)$$

Mit dem Resultat aus Gleichung (3.6) kann die skalierte Geschwindigkeit V/D_{eff} durch die gemessenen Größen Γ_{eff} und d_{eff} und durch die Crossover-Länge ξ , gegeben durch Gleichung (3.5), ausgedrückt werden. Deshalb verhält sich die skalierte

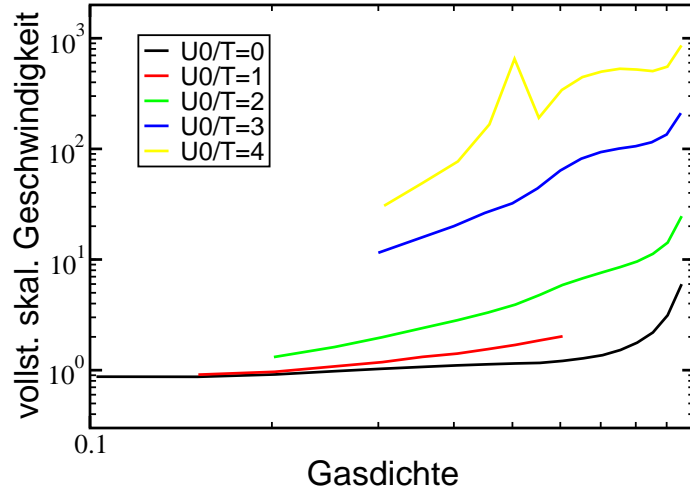


Abbildung 3.8: Abweichungen vom asymptotisch erwarteten Skalenverhalten. Die linke Seite von Gleichung (3.13) ist gegen die Dichte n_g des Gitter-Gases aufgetragen [34].

Geschwindigkeit im Limes kleiner Dichten wie

$$\frac{V}{D_{\text{eff}}} \sim \pi \left[\left(\frac{\xi}{a} \right)^{-\Delta d_f} \frac{n_g}{\Gamma_{\text{eff}}} \right]^{\frac{1}{2-d_{\text{DLA}}}} \quad (3.12)$$

mit $\Delta d_f = d_{\text{eff}} - d_{\text{DLA}}$.

Um die Abweichungen vom asymptotischen Skalenverhalten zu zeigen, betrachten wir die „vollständig skalierte Geschwindigkeit“

$$\frac{V}{D_{\text{eff}}} \frac{1}{\pi} \left[\left(\frac{\xi}{a} \right)^{-\Delta d_f} \frac{n_g}{\Gamma_{\text{eff}}} \right]^{-\frac{1}{2-d_{\text{DLA}}}} \sim 1, \quad (3.13)$$

welche sich im Limes $n_g \rightarrow 0$ einer Konstante der Ordnung $O(1)$ annähert. Die linke Seite von Gleichung (3.13) ist in Abbildung 3.8 aufgetragen.

Da der Vorfaktor ρ_{eff} der radialen Dichte $\rho(r)$ eines DLA-Clusters mit höherer Genauigkeit bekannt ist als Γ_{eff} , werden wir letzteren durch $\Gamma_{\text{eff}} \approx 2/3 \rho_{\text{eff}}$ approximieren, ein Zusammenhang, der aus dem Fall ohne Wechselwirkung bekannt ist. Eine Übersicht über die so erhaltenen Werte liefert Tabelle 3.1.

Startet man mit einer recht hohen Dichte $n_g \approx 1/2$, nimmt die Steigung der vollständig skalierten Geschwindigkeit, siehe Abbildung 3.8, mit stärker werdender Wechselwirkung zu. Die Abweichung ist in Übereinstimmung mit einer sich dem Wert $d_{\text{eff}} = 2$ nähernden effektiven fraktalen Dimension. In diesem Regime kann die Wachstumsgeschwindigkeit durch die erhöhte effektive fraktale Dimension charakterisiert werden.

Verringert man die Teilchendichte, nimmt die Steigung ebenfalls ab, begrenzt durch die Steigung des nicht wechselwirkenden Systems $U_0/T = 0$. Für eine relativ schwache Wechselwirkung $U_0/T = 1$ konvergiert die vollständig skalierte Geschwindigkeit

U_0/T	d_{eff}	ρ_{eff}	ξ	Δd_f	ρ_{DLA}	Γ_{DLA}
0	1.705	0.61	5	0.00	0.60	0.40
1	1.745	0.60	26	0.025	0.68	0.46
2	1.85	0.43	136	0.135	0.88	0.58
3	1.95	0.33	706	0.235	1.65	1.10
4	1.98	0.26	3675	0.265	2.48	1.65

Tabelle 3.1: Abhängigkeit der Größe Γ_{DLA} und anderer Parameter von der Wechselwirkungsstärke U_0/T .

gegen denselben Wert wie das System mit $U_0/T = 0$. Daraus lässt sich schließen, dass im Grenzfall kleiner Dichten die Wachstumsgeschwindigkeit der Front durch die fraktale Dimension des einfachen DLA-Clusters bestimmt wird. Für die höheren Wechselwirkungsstärken liegt der asymptotische Bereich bei sehr viel kleineren Dichten n_g , die der Simulation aufgrund des steigenden Aufwands nicht mehr zugänglich sind.

Eine genauere Analyse des Gitter-Gases führt zu der Erkenntnis, dass das Gas in der Nähe der Dichte $n_g = 0.5$ ebenfalls korreliert ist und dass die Korrelationslänge des Gases im Wettbewerb mit der Diffusionslänge steht.

Der drastische Anstieg der Korrelation bei der Dichte $n_g = 0.5$ kann als eine Art Resonanz-Effekt verstanden werden. Es zeigt sich jedoch, dass für schwache Wechselwirkung $U_0/T \lesssim 3$ die Korrelationslänge des Gases immer noch von der Ordnung $\mathcal{O}(1)$ ist und somit vernachlässigt werden kann. Für eine stärkere Wechselwirkung wird diese Längenskala jedoch relevant und ist der Grund für das irreguläre Verhalten des Graphen für die Wechselwirkungsstärke $U_0/T = 4$ in Abbildung 3.8.

3.4 Zusammenfassung

Im Falle der DLA-Cluster wird durch die elastische Repulsion eine neue Längenskala generiert, welche die Struktur des Clusters in zwei Regime unterteilt. Für kleine Abstände führt die elastische Wechselwirkung zu einer erhöhten effektiven fraktalen Dimension. Das asymptotische Verhalten der Struktur und damit die effektive fraktale Dimension auf großen Längenskalen bleibt jedoch unverändert, siehe Abbildung 3.2(b).

Das Ergebnis unserer Simulation zeigt, dass die Identifizierung der Korrelationslänge des Clusters mit der Diffusionslänge des Gittergases, auch in Anwesenheit elastischer Wechselwirkung, ein wirksamer Mechanismus zur Selektion der Front-Geschwindigkeit ist [34, 35]. Das Crossover-Verhalten der effektiven fraktalen Dimension von DLA unter elastischer Wechselwirkung hat nachweislich einen starken Einfluss auf die Eigenschaften des fraktalen Wachstums. Erst für sehr kleine Teilchendichten wird das Verhalten durch die asymptotischen Eigenschaften von DLA allein bestimmt. Der

Vorfaktor des Skalengesetzes, siehe Gleichung (3.12), kann durch nicht universelle Größen ausgedrückt werden, die von der Wechselwirkungsstärke abhängen. Die Ergebnisse zeigen, dass die Anwesenheit einer elastischen Wechselwirkung das Verhalten der fraktalen Wachstumsmodelle zum Teil erheblich verkompliziert, auch wenn gewisse asymptotische Eigenschaften erhalten bleiben.

Kapitel 4

Epitaktisches Wachstum im Submonolagen-Bereich

Befasst sich das Kapitel 3 mit dem diffusiven Wachstum von einzelnen fraktalen Clustern, so geht es hier um die Nukleation und das gleichzeitige Wachstum von flachen Clustern auf einem Substrat. Wir werden der bisher unbeantworteten Frage nachgehen, welchen Einfluss die vom Substrat vermittelte repulsive elastische $1/r^3$ -Wechselwirkung zwischen den Adsorbatatomen auf das Nukleationsverhalten der Cluster hat. Die in diesem Kapitel präsentierten Ergebnisse wurden in [36] veröffentlicht.

Von der Wechselwirkung elastischer Kraft-Dipole auf einem Substrat ausgehend definieren wir ein Monte-Carlo-Modell, welches im Anfangsstadium des epitaktischen Wachstums in der Molekularstrahlepitaxie angesiedelt ist.

In der Analyse gehen wir zunächst vom wechselwirkungsfreien Fall aus. Die Beschreibung basiert dabei auf Raten-Gleichungen, aufgrund derer sich eine Aussage über die Skaleneigenschaften der Cluster-Statistik in Form von Inselanzahlen und der Oberflächendiffusionsrate treffen lässt. Im weiteren Verlauf wird diese Beschreibung um die Effekte einer repulsiven elastischen Wechselwirkung erweitert.

Um eine effiziente Simulation der Vielteilchen-Diffusion unter langreichweitiger Wechselwirkung zu ermöglichen, findet ein Multigrid-Verfahren Anwendung, welches die Ordnung des Aufwands drastisch reduziert. Das Ergebnis der Simulation zeigt beispielsweise, dass mit steigender elastischer Wechselwirkung zwischen den adsorbierten Atomen die Inselbildung behindert wird und die Nukleationsphase zu höheren Bedeckungen verschoben wird.

4.1 Motivation

Heteroepitaktisches Wachstum ist ein wichtiger Prozess für das generelle Verständnis des Kristallwachstums [37–39] und für die Herstellung von Halbleiter-Bauelementen.

Es muss davon ausgegangen werden, dass in der Mehrzahl der Fälle elastische Spannungen die Wachstumseigenschaften beeinflussen und eine Vielzahl von Wachstums-morphologien entstehen lassen. Der Unterschied in den Gitterkonstanten zwischen Adsorbat-Schichten und einem Substrat eines anderen Materials führt zur Deformation von sowohl Substrat als auch Adsorbat.

Bis zu einer kritischen Größe wird das Adsorbat, abgesehen von einer lokalen Änderung des Gitterparameters, die Struktur des Substrats übernehmen. Diese kohärente Gitter-Deformation führt typischerweise zu einer langreichweitigen Wechselwirkung zwischen adsorbierten Atomen, die sich für große Abstände r wie $1/r^3$ verhält [16, 17, 40, 41] und über das Substrat vermittelt wird.

Im Gegensatz zu anderen Systemen, bei denen die Deposition beispielsweise gepulst erfolgt [42–45], und bei denen das Verhältnis von der Zeit zwischen den Pulsen eine entscheidende Rolle spielt, oder Systemen, bei denen die Deposition in einem sehr kurzen Zeitraum – einem einzelnen Puls – erfolgt [1, 46], geht es im Folgenden um eine frühe Stufe der Inselbildung in einem System mit vorgegebenem konstanten Depositionsfluss. Im Grenzfall tiefer Temperaturen kann der Prozess der Desorption vernachlässigt werden. Die Anlagerung von Adatomen an schon bestehende Inseln ist somit irreversibel.

Zunächst folgt eine detaillierte Beschreibung des Modells und der Ergebnisse aus der Monte-Carlo-Simulation. Danach folgt eine Skalentheorie, welche auf Ratengleichungen und einigen wenigen einfachen Annahmen basiert und die wesentlichen Eigenschaften dieses Stadiums der Inselbildung wiedergibt.

4.2 Modellbeschreibung

Das System besteht aus einem zweidimensionalen quadratischen Gitter der Größe $L \times L$ mit einer Gitterkonstante Δx . Dieses Quadratgitter repräsentiert ein immer flach bleibendes Substrat, das heißt im Verlauf der Simulation findet keine Umordnung von Substrat-Atomen statt.

Diese zunächst leere Kristalloberfläche ist nun einem konstanten Strom von Atomen ausgesetzt, die sich dort anlagern. Im Rahmen dieses Modells zur Molekularstrahl-epitaxie wird angenommen, dass der Depositionsprozess ballistisch ist, das heißt, dass die Anlagerung zufällig ist und die Wahrscheinlichkeit nicht von einem lokalen chemischen Potential beeinflusst wird.

Die Depositionsrate F (gemessen als Anzahl von Atomen pro cm^2 und Sekunde) ist somit für alle Gitterplätze gleich. Einzelne Adatome, nachfolgend oft auch Monomere genannt, diffundieren auf dem Gitter. Sie unterliegen dabei einem langreichweitigen Wechselwirkungspotential U_0/r^3 , welches durch die elastische Deformation des Substrats verursacht und mit dem Abstand r schwächer wird.

Es wird im Folgenden angenommen, dass die Temperatur T niedrig genug ist, um eine kritische Inselgröße von zwei Adsorbatatomen zu rechtfertigen, das heißt Inseln

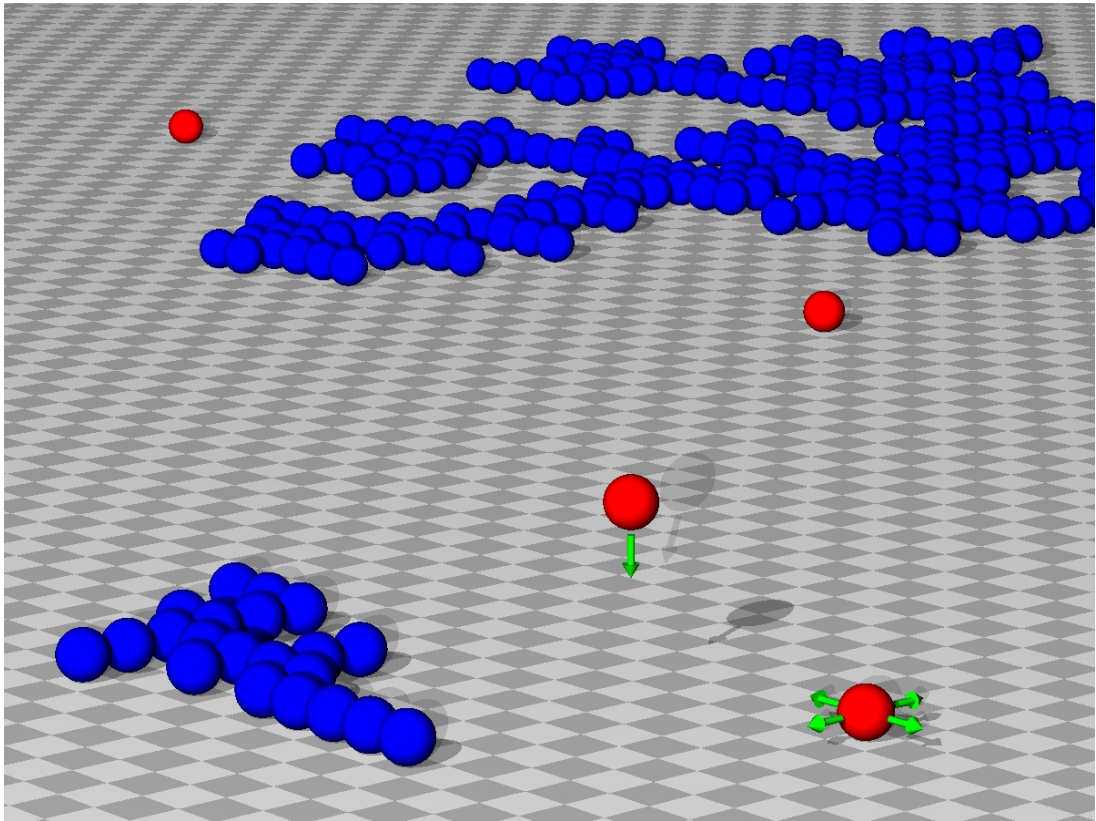


Abbildung 4.1: Einzelne Monomere werden zufällig auf der Oberfläche deponiert, unterliegen der Wechselwirkung mit allen anderen Adsorbatsatomen und diffundieren, bis sie sich irreversibel an eine schon bestehende Insel anlagern oder mit einem anderen Monomer eine neue unbewegliche Insel bilden.

aus mehr als zwei Teilchen sind stabil und können nicht wieder schrumpfen, sondern nur durch Anlagerung wachsen. Mit anderen Worten bilden zwei Monomere, die sich an einer Stelle auf dem Gitter treffen, sofort eine stabile unbewegliche Insel, ein so genanntes Dimer, welches durch sukzessiven Einbau weiterer Monomere wächst. Bei höheren Temperaturen wären dann auch Effekte wie die Diffusion von ganzen Inseln zu berücksichtigen.

Monomere können durch den ballistischen Depositionsprozess im Prinzip auch auf einer schon existierenden Insel landen. In diesem Fall diffundieren sie einfach solange auf der Insel, bis sie den Rand erreichen und aufgrund der Abwesenheit einer Schwöbel-Barriere in der tieferen Lage sofort eingebaut werden oder bis sie mit einem anderen Monomer eine Insel auf der schon bestehenden Insel bilden.

Um eine Form von elastischer Relaxation in den höheren Lagen zu modellieren, nimmt die elastische Wechselwirkung auf den höheren Adsorbatschichten ab, und zwar exponentiell auf der Skala der mittleren Inselbreite. Für die nachfolgend diskutierten Aspekte ist diese elastische Relaxation jedoch von untergeordneter Bedeutung, da

höhere Lagen für Bedeckungen unter einer Monolage so gut wie keinen Einfluss haben.

Ausgehend von einem nackten Substrat wird zu Beginn eines jeden Zeitschrittes Δt eine feste Anzahl von Adsorbat-Teilchen $N = AF\Delta t$ entsprechend des vorgegebenen Depositionsflusses F auf das Substrat der Größe $A = L^2\Delta x^2$ aufgebracht.

Die Umsetzung der Monomer-Diffusion gehorcht den folgenden Regeln: Im Mittel bekommt jedes Monomer einmal pro Zeitschritt Δt die Möglichkeit eines Hüpfversuchs, bei dem als Ziel einer der vier Nachbarplätze zufällig ausgewählt wird. Gemäß der üblichen Vorgehensweise wird der Versuch mit einer Wahrscheinlichkeit p angenommen, welche von der Änderung der elastischen Energie ΔU abhängt, und mit der Wahrscheinlichkeit $1 - p$ verworfen.

Aufgrund des hohen Akzeptanzverhältnisses wird in dieser Implementierung das so genannte Metropolis-Verfahren [47] verwendet. Im weiteren Verlauf dieses Kapitels wird die Temperatur T in Einheiten der Energie angegeben ($k_B = 1$). Ist die Änderung der Energie negativ $\Delta U/T < 0$, so wird der Versuch in jedem Fall akzeptiert und es gilt $p = 1$. Kostet der Schritt Energie $\Delta U/T \geq 0$, so wird der Versuch mit der Wahrscheinlichkeit $p = \exp(-\Delta U/T)$ akzeptiert. Formal lässt sich folglich die Akzeptanzwahrscheinlichkeit in der Form

$$p = \min[1, \exp(-\Delta U/T)] \quad (4.1)$$

schreiben.

Im makroskopischen Limes gehorcht die Aufenthaltswahrscheinlichkeit $p(\mathbf{r}, t)$ der hüpfenden Teilchen ohne Wechselwirkung einer kontinuierlichen Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial p(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = D\nabla^2 p(\mathbf{r}, t)$$

mit einer Diffusionskonstanten D . Setzt man $\Delta x = 1$ sowie $\Delta t = 1$, so entspricht der Algorithmus einer Diffusionskonstanten $D = 1/4$. Im Folgenden werden alle Längen als Vielfache der Gitterkonstanten angegeben.

Um die Änderung der elastischen Energie ΔU durch einen Hüpfprozess mit vertretbarem Aufwand zu berechnen, wird ein Multigrid-Monopol-Verfahren verwendet, welches auf der in Referenz [31] vorgestellten Idee basiert. Wir verzichten an dieser Stelle auf eine Darstellung der Funktionsweise des Verfahrens. Details hierzu folgen im Kapitel 5.7. Durch die gröbere Behandlung von weit entfernten Adatomen nach Art einer Multipolentwicklung wird die Einführung eines Potentials mit Cutoff, das heißt einer maximalen Reichweite der Wechselwirkung und damit der Einführung einer weiteren Längenskala vermieden und der numerische Aufwand auf den Logarithmus der lateralen Systemabmessungen reduziert.

Die Simulation wurde auf einem Gitter der Kantenlänge $L = 1024$ durchgeführt. Das System wurde dabei in beiden Richtungen periodisch fortgesetzt. Die Ergebnisse wurden, abhängig vom Depositionsfluss, über 4 bis 16 Läufe gemittelt. Ist das Verhältnis D/F klein, so bilden sich viele Inseln im simulierten System. In diesem Fall reicht die

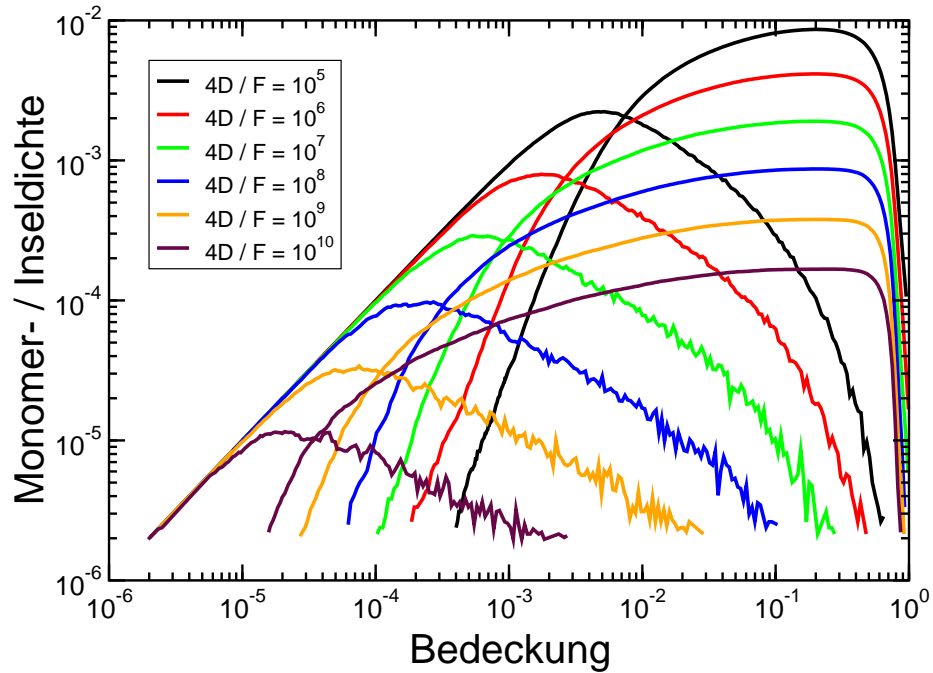


Abbildung 4.2: Monomerdichten ρ_1 und Inselldichten ρ aufgetragen gegenüber der Bedeckung θ ohne elastische Wechselwirkung $U_0/T = 0$. Das Verhältnis $4D/F$ reicht von 10^5 bis 10^{10} .

räumliche Mittelung aus, um selbst mit wenigen Läufen eine recht gute Statistik der Inselzahlen zu erreichen. Ist jedoch D/F groß, so bilden sich verhältnismäßig wenige Inseln im simulierten Bereich. Die sich daraus ergebende ungenauere Statistik lässt sich bis zu einem gewissen Grad durch mehr Läufe ausgleichen.

4.3 Ergebnisse der Simulation

Startet man mit einem unbedeckten Substrat, gelangen mit dem Einsetzen des Depositionsstroms Monomere auf das Substrat, die zunächst auf der Oberfläche diffundieren, bis sich durch das Zusammentreffen von mehreren Monomeren Inseln bilden. Die Abhängigkeit der Anzahlen von Monomeren und Inseln von den Systemparametern ist der Kernpunkt der folgenden Analyse.

4.3.1 Monomer- und Inselldichten

Abbildung 4.2 und Abbildung 4.3 zeigen die Anzahl der Monomere ρ_1 und die Anzahl der Inseln ρ während des Depositionsprozesses. Die Anzahl der Monomere steigt zunächst fast linear mit der Bedeckung θ , bis sie ihr Maximum erreicht. Danach nimmt die Zahl der Monomere stetig ab, die Anzahl der Inseln jedoch übersteigt

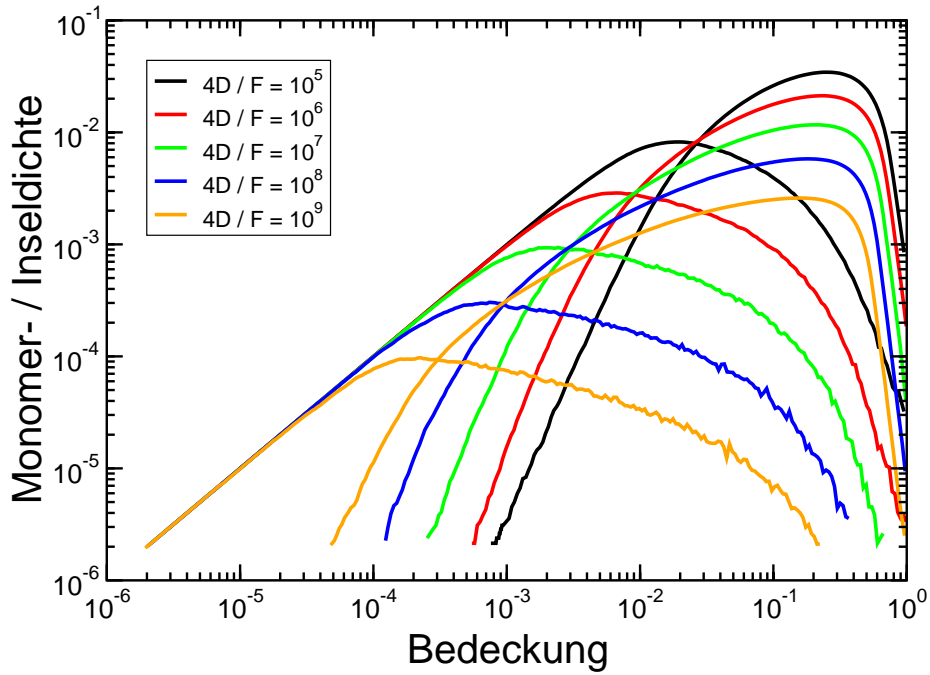


Abbildung 4.3: Monomerdichten ρ_1 und Inseldichten ρ aufgetragen gegenüber der Bedeckung θ bei starker elastischer Wechselwirkung $U_0/T = 4$. Das Verhältnis $4D/F$ nimmt Werte von 10^5 bis 10^9 an.

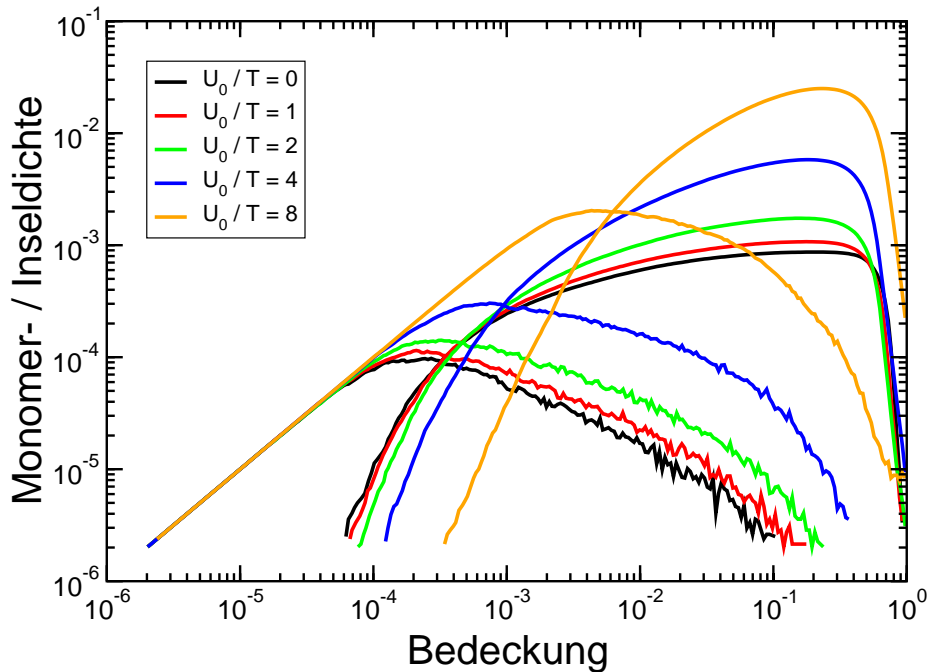


Abbildung 4.4: Monomerdichten ρ_1 und Inseldichten ρ aufgetragen gegenüber der Bedeckung θ bei $4D/F = 10^8$. Das Verhältnis U_0/T reicht von 0 bis 8.

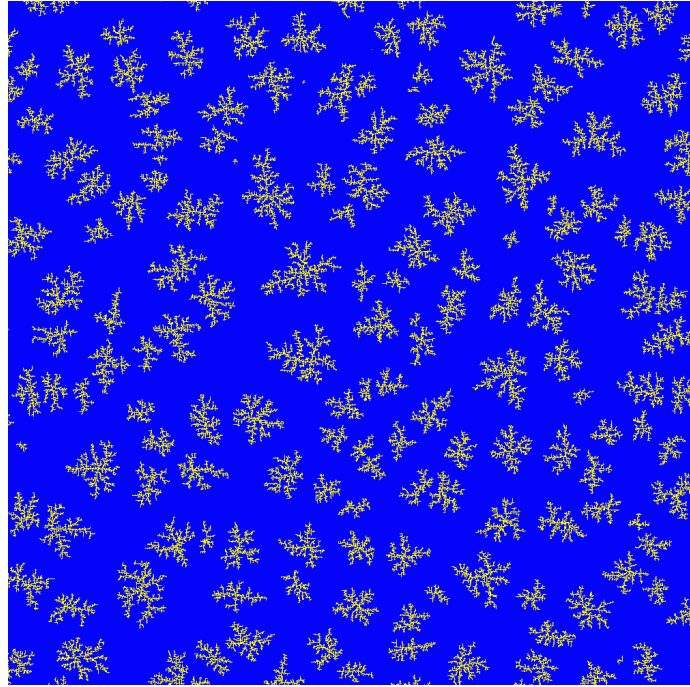


Abbildung 4.5: Inselkonfiguration ohne Wechselwirkung $U_0/T = 0$ bei $4D/F = 10^{10}$ und einer Bedeckung $\theta = 0.1$.

schließlich die Zahl der Monomere und nimmt weiter zu, bis die Bedeckung in die Größenordnung einer Monolage erreicht. In dieser Phase führt das Zusammenwachsen der verschiedenen Inseln (Koaleszenz) zu einer starken Reduktion der Inselzahl. Bis zu diesem Zeitpunkt können die Beiträge höherer Adsorbatlagen ignoriert werden. Der Einfachheit halber wird zur Bestimmung der Insel- und Monomerzahlen nur die erste Lage auf dem Substrat herangezogen. Nichtsdestoweniger ist im Rahmen dieses Modells eine Viellagen-Inselbildung möglich.

Mit steigendem Verhältnis von Diffusionskonstante zu Depositionsfluss D/F nimmt das Maximum der Monomerdichte ab und verlagert sich in Richtung niedrigerer Bedeckungen. Das betrifft sowohl die Simulation ohne als auch die Simulation mit elastischer Wechselwirkung.

Vergleicht man die Daten für verschiedene Stärken U_0/T der Wechselwirkung bei gleichem D/F , wie in Abbildung 4.4 gezeigt, so stellt man fest, dass die Wechselwirkung das Maximum der Monomerdichte in Richtung höherer Bedeckungen verschiebt. Weil eine repulsive elastische Wechselwirkung die Monomere auf Distanz hält, wird die Bildung von Dimeren, und damit natürlich die Bildung von Inseln, wirksam unterdrückt.

Den Effekt der elastischen Wechselwirkung auf die Inselzahl findet man bestätigt, wenn man Inselkonfigurationen bei gleicher Bedeckung $\theta = 0.1$ vergleicht, siehe Abbildung 4.5, 4.6 und 4.7. Letztere zeigen, dass sowohl ein erhöhter Depositionsfluss, als auch eine erhöhte Wechselwirkungsstärke dazu führen, dass die Inselanzahl steigt,

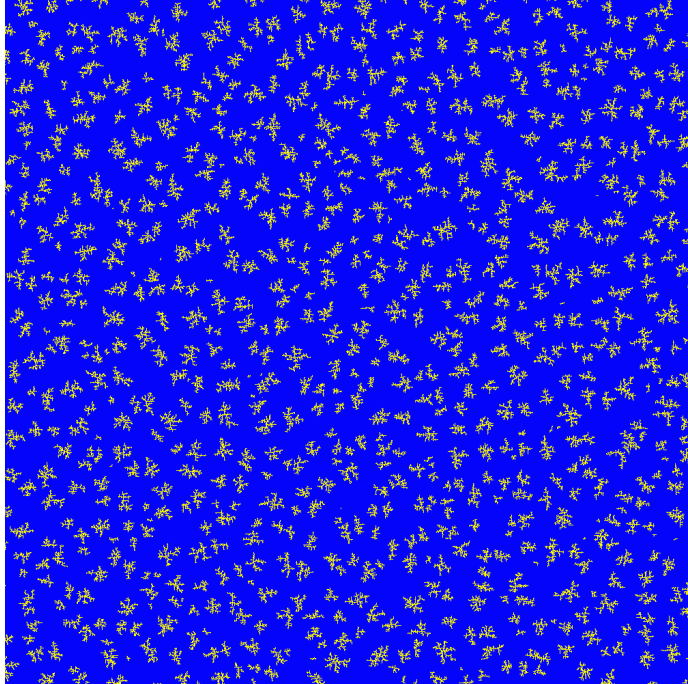


Abbildung 4.6: Inselkonfiguration ohne Wechselwirkung $U_0/T = 0$ bei $4D/F = 10^8$ und einer Bedeckung $\theta = 0.1$.

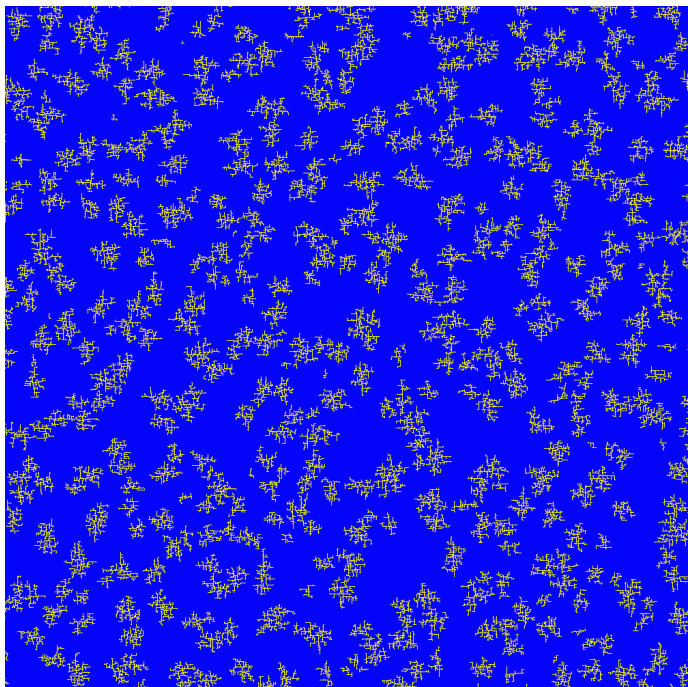


Abbildung 4.7: Inselkonfiguration mit Wechselwirkung $U_0/T = 3$ bei $4D/F = 10^{10}$ und einer Bedeckung $\theta = 0.1$.

während die Inselgröße sinkt. Sehr gut erkennbar ist auch, dass der Limes $D/F \rightarrow \infty$ dem *Diffusion Limited Aggregation* Modell (DLA) entspricht und die Inseln den bekannten fraktalen Charakter besitzen.

4.3.2 Skalenanalyse ohne Wechselwirkung

Ein neu deponiertes Monomer wird gewöhnlich eine charakteristische Zeit τ_c auf der Oberfläche diffundieren, bis es letztendlich eine Insel oder ein anderes Monomer erreicht und unbeweglich wird. Im einen Fall wird es in die Insel eingebaut, im anderen Fall bilden die zwei Monomere eine neue Insel und werden ebenfalls unbeweglich.

Die Einfangzeit τ_c kann mit dem Fluss F und der Monomerdichte auf der Oberfläche ρ_1 über

$$\rho_1 \sim F\tau_c \quad (4.2)$$

in Beziehung gesetzt werden.

Da man es im Gittermodell aus mikroskopischer Sicht nicht mit kontinuierlicher Diffusion sondern mit einem diskreten Hüpfprozess zu tun hat, ist es sinnvoller, für die Beschreibung der einzelnen Monomere, so genannter *Random Walker*, die Anzahl der gemachten Schritte n zu betrachten als die verstrichene Zeit t . Sind sowohl die Länge eines Zeitschritts Δt als auch die Gitterkonstante Δx gegeben, liegt auch die makroskopische Diffusionskonstante

$$D \sim \frac{(\Delta x)^2}{4\Delta t} \quad (4.3)$$

fest. Die mittlere Anzahl der während des *Random Walk* auf einem zweidimensionalen Gitter nach n Schritten überstrichenen verschiedenen Gitterplätze $S(n)$ ist eine für die folgende Argumentation sehr nützliche Größe.

Weil im Folgenden die Größe $S(n)$ auch für kleine n ausgewertet werden muss, ist es unumgänglich, sich mit dieser so genannten *First-Passage-Time*-Größe etwas genauer auseinanderzusetzen. Während frühere Arbeiten [48–50] logarithmische Korrekturen in Form des asymptotisch richtigen Ausdrucks $S(n) \sim \pi n / \ln n$ verwendet haben, kann man sehen, dass sich die Anzahl der besuchten Plätze für kleine $n \sim 10$ –1000 eher wie $S(n) \sim \pi n / \ln 8n$ verhält. Eine noch bessere Näherung steht mit einer Arbeit von F. S. Henyey und V. Seshadri [51] zur Verfügung, in der mit dem Ausdruck

$$S(n) \sim \frac{\pi n}{\ln 8n} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{c_j}{(\ln 8n)^j} \left[1 + O\left(\frac{1}{n}\right) \right] \quad (4.4)$$

eine Entwicklung hergeleitet wurde. Die hierin enthaltenen Koeffizienten c_j lassen sich über Ableitungen der Γ -Funktion ausdrücken. Die Autoren geben in ihrer Arbeit tabellierte Werte bis $j = 20$ an. Korrekturen zum Ausdruck (4.4) sind von der Ordnung $O(1/\ln n)$. Sie werden im Folgenden berücksichtigt durch einen zusätzlichen Term $1/(a + b \ln n)$, wobei die Koeffizienten a und b sich über eine numerische Anpassung bestimmen lassen [51]. Bei der numerischen Auswertung kann man sich hier auf

die ersten Terme der Entwicklung (4.4) und den Korrekturterm beschränken. Diese Näherung des Ausdrucks $S(n)$ macht Sinn für alle $n > 1$. Der Einfachheit halber wird im Folgenden $S(n)$ in der Form

$$S(n) \sim n f_c(n) \quad (4.5)$$

geschrieben, wobei die Korrekturfunktion f_c alle Abweichungen vom linearen Verhalten beinhaltet.

Der Grund für die Bedeutung der Größe $S(n)$ liegt in der Beziehung zur Wahrscheinlichkeit, dass ein Monomer auf ein weiteres Adatom trifft. Kennt man die Anzahl der unterschiedlichen besuchten Gitterplätze, so kann man den Ausdruck $\Delta x^2 S(\tau_c/\Delta t)$ als effektive Oberfläche interpretieren, die ein Monomer während der charakteristischen Zeit τ_c abdeckt. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein diffundierendes Monomer mit einer Lebenszeit τ_c mit einer Insel oder einem anderen Monomer kollidiert, ist also in etwa proportional zu $\Delta x^2 S(\tau_c/\Delta t)/\tau_c$ und der Oberflächendichte ρ_1 .

Nach diesen Vorbetrachtungen lassen sich Ratengleichungen aufstellen, die die Effekte der Diffusion auf dem Gitter berücksichtigen. Das Ziel ist es, die Dichte der Monomere ρ_1 mit der Inseldichte ρ und der Bedeckung θ zu verknüpfen, um eine Beschreibung zu erhalten, die im Grenzfall kleiner Bedeckungen θ gültig ist, in dem Inselgröße und Geometrie vernachlässigt werden können. Die Einfang- oder Kollisionsraten können somit als unabhängig von der Inselgröße angenommen werden. Diese Näherung ist in gewisser Weise äquivalent zum so genannten *Point-Island-Modell* [52], in dem angenommen wird, dass Inseln durch Anlagerung von Monomeren ihre Größe nicht ändern, sondern immer ihre infinitesimale Größe von einem Gitterplatz beibehalten.

Die Gleichungen haben die allgemeine Form

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{\Delta x^2 S(\tau_c/\Delta t)}{\tau_c} \rho_1^2, \quad (4.6)$$

$$\frac{d\rho_1}{dt} = F - 2 \frac{\Delta x^2 S(\tau_c/\Delta t)}{\tau_c} \rho_1^2 - \frac{\Delta x^2 S(\tau_c/\Delta t)}{\tau_c} \rho \rho_1. \quad (4.7)$$

Die Anzahl der Monomere ρ_1 in Gleichung (4.7) wächst durch Deposition und verringert sich sowohl durch den Prozess der Dimerbildung, als auch durch das Wachstum bestehender Inseln. Die Anzahl der Inseln ρ in Gleichung (4.6) hingegen nimmt nur durch die Bildung von Dimeren zu, weil das Wachstum einer Insel nicht zu einer Änderung der Inselanzahl führt.

Unter Kenntnis der Bedeckung θ , die durch die Deposition von Teilchen linear mit der Zeit zunimmt $\theta = Ft$, sowie durch die Verwendung der Gleichungen (4.5) und (4.2) kann man die charakteristische Längenskala

$$l_c(\rho_1) = \left[\frac{4D}{F} f_c \left(\frac{4D}{F} \frac{\rho_1}{\Delta x^2} \right) \right]^{1/4} \quad (4.8)$$

definieren und die obigen Gleichungen lassen sich etwas übersichtlicher in der Form

$$\frac{d\rho}{d\theta} = l_c^4(\rho_1)\rho_1^2, \quad (4.9)$$

$$\frac{d\rho_1}{d\theta} = 1 - 2l_c^4(\rho_1)\rho_1^2 - l_c^4(\rho_1)\rho\rho_1 \quad (4.10)$$

schreiben.

Weil die charakteristische Längenskala l_c eine relativ schwache Abhängigkeit von der Bedeckung θ zeigt, kann genau diese Abhängigkeit von θ auf der linken Seite von (4.9) und (4.10) bei der Umschreibung auf die skalierten Variablen $\tilde{\theta} = \theta l_c^2(\rho_1)$, $\tilde{\rho} = \rho l_c^2(\rho_1)$ und $\tilde{\rho}_1 = \rho_1 l_c^2(\rho_1)$ vernachlässigt werden.

Genau genommen sind die Ableitungen der skalierten und unskalierten Variablen durch

$$\frac{d\tilde{\rho}_1}{d\tilde{\theta}} = \frac{1 + g(n)}{1 + \frac{d\ln\rho_1}{d\ln\theta}g(n)} \frac{d\rho_1}{d\theta} \quad \text{mit} \quad g(n) = \frac{nf'_c(n)}{2f_c(n)} \quad (4.11)$$

und

$$\frac{d\tilde{\rho}}{d\tilde{\theta}} = \frac{1 + \frac{d\ln\rho_1}{d\ln\rho}g(n)}{1 + \frac{d\ln\rho_1}{d\ln\theta}g(n)} \frac{d\rho}{d\theta} \quad (4.12)$$

verknüpft, wobei mit steigender Lebenszeit τ_c der Ausdruck $g(n = \tau_c/\Delta t)$ gegen 0 geht.

Da ρ_1 lokal als Potenzgesetz genähert werden kann, $\rho_1 \sim \theta^\alpha$, ist der Ausdruck $d\ln\rho_1/d\ln\theta$ gerade der durch die Näherung definierte lokale Exponent α . Für den im vorliegenden Fall die Annahme gerechtfertigt ist, dass es sich um eine Zahl von $\mathcal{O}(1)$ handelt. In analoger Weise lässt sich schliessen, dass $d\ln\rho_1/d\ln\rho$ ebenso von $\mathcal{O}(1)$ ist.

Mit diesen Argumenten lassen sich folglich im Limes langer Lebenszeit τ_c die Ableitungen auf den linken Seiten von (4.9) und (4.10) durch die skalierten Ausdrücke ersetzen, als ob die charakteristische Länge l_c nicht von der Monomerdichte abhinge.

Durch diese Skalierung erhalten die Gleichungen die folgende dimensionslose Form

$$\frac{d\tilde{\rho}}{d\tilde{\theta}} = \tilde{\rho}_1^2, \quad (4.13)$$

$$\frac{d\tilde{\rho}_1}{d\tilde{\theta}} = 1 - 2\tilde{\rho}_1^2 - \tilde{\rho}\tilde{\rho}_1, \quad (4.14)$$

wobei die führenden Korrekturterme aufgrund von f_c sich in der Art der Skalierung der Variablen niederschlagen.

Auch wenn sich keine exakten Lösungen finden lassen, lässt sich zumindest das Skalenverhalten der obigen Gleichungen analysieren. Für genügend kleine Bedeckungen $\tilde{\theta} \ll 1$ sind die Verlustterme in Gleichung (4.14) klein im Vergleich zum Term des Depositionsflusses der Ordnung eins und können somit vernachlässigt werden. Deshalb ist

$$\tilde{\rho}_1 \sim \tilde{\theta}, \quad (4.15)$$

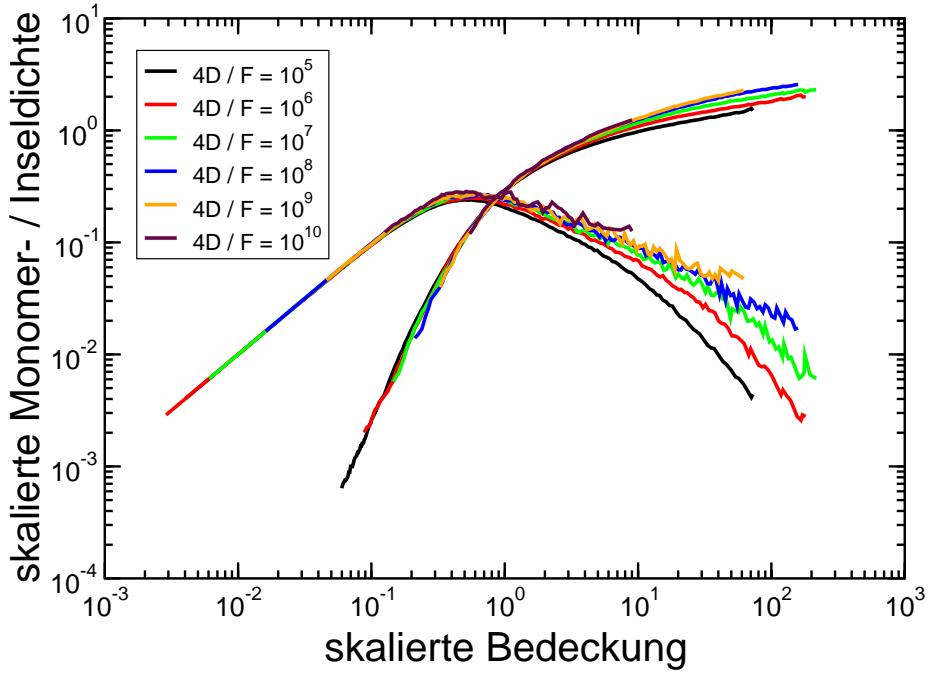


Abbildung 4.8: Skalierte Monomerdichte $\tilde{\rho}_1$ und Inseldichte $\tilde{\rho}$ aufgetragen gegen die skalierte Bedeckung $\tilde{\theta}$ ohne elastische Repulsion $U_0/T = 0$ für relative Mobilitäten $4D/F$ von 10^5 bis 10^{10} . Die horizontale Achse wurde mit l_c^2 aus Gleichung (4.8) skaliert.

und folglich gilt

$$\tilde{\rho} \sim \frac{1}{3} \tilde{\theta}^3. \quad (4.16)$$

Für hohe Bedeckungen $\tilde{\theta}$ wird schließlich die Inseldichte $\tilde{\rho}$ größer als die Dichte der Monomere $\tilde{\rho}_1$, was dazu führt, dass sich $\tilde{\rho}_1$ um so mehr verkleinert. Dann ist aber $\tilde{\rho}_1 \ll \tilde{\rho}$, und der mittlere Term in (4.14) kann vernachlässigt werden. Damit muss aber $\tilde{\rho}_1 \tilde{\rho}$ von Größenordnung eins sein, woraus sich $\tilde{\rho}_1 \sim \tilde{\rho}^{-1}$ schließen lässt. Setzt man dies in Gleichung (4.13) ein, so folgt für die skalierten Dichten sofort $\tilde{\rho} \sim \tilde{\theta}^{1/3}$ und $\tilde{\rho}_1 \sim \tilde{\theta}^{-2/3}$. Da für große Bedeckungen die Inselgröße und geometrische Effekte nicht mehr vernachlässigt werden können, stimmt die Voraussage der Ratengleichungen in diesem Grenzfall nicht mit dem tatsächlich beobachteten Verhalten überein, und man sollte daher das hier hergeleitete asymptotische Verhalten von $\tilde{\rho}_1$ und $\tilde{\rho}$ nur als qualitatives Ergebnis verstehen.

Abbildung 4.8 zeigt die skalierte Auftragung der Daten aus Abbildung 4.2. Offenbar ist die Vorhersage der Skalentheorie für kleine Bedeckungen gültig. Der Datenkollaps ist gut bis hin zu $\tilde{\theta} \sim 1$. Der anfängliche Anstieg von $\tilde{\rho}_1$ und $\tilde{\rho}$ stimmt mit der Vorhersage $\tilde{\rho}_1 \sim \tilde{\theta}$, $\tilde{\rho} \sim 1/3 \tilde{\theta}^3$ überein.

Es muss an dieser Stelle betont werden, dass die Vernachlässigung der n -Abhängigkeit von $f_c(n)$ und die hieraus resultierende einfache Skalierung durch eine konstante

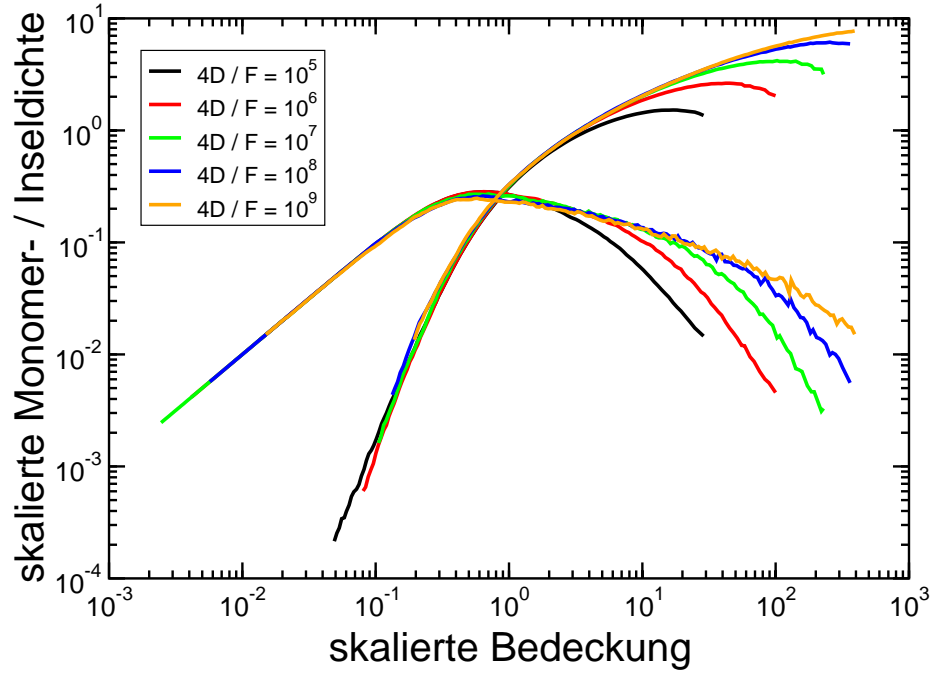


Abbildung 4.9: Skalierte Monomerdichte $\tilde{\rho}_1$ und Inselldichte $\tilde{\rho}$ aufgetragen gegen die skalierte Bedeckung $\tilde{\theta}$ mit elastischer Wechselwirkung für festes $U_0/T = 4$, relative Mobilität $4D/F$ im Bereich von 10^5 bis 10^9 .

Längenskala l_c nicht zu einem Kollaps der Maxima der Monomerdichten führt, man vergleiche hierzu eine Abbildung aus Referenz [50].

4.3.3 Einbeziehung der Wechselwirkung

Wie kann man aber nun die elastische Abstoßung der Monomere und Inseln mit in die Argumentation einbeziehen? Zunächst ist das Verhältnis D/F das Verhältnis zweier Zeitskalen

$$D/F \sim \tau_F/\tau_D. \quad (4.17)$$

τ_F ist hierbei die Zeit, die vergeht, bis eine ganze Lage deponiert ist und τ_D ist festgelegt durch die Diffusionsbarriere E_D . Die elastische Wechselwirkung erzeugt eine neue Zeitskala τ_e , welche durch die Stärke des Wechselwirkungspotentials U_0/r^3 bestimmt ist. Monomere müssen diese Barriere überwinden um sich an ein anderes Monomer oder eine Insel anzulagern.

Es existieren also die Zeitskalen

$$\tau_D \sim \exp(E_D/T) \quad (4.18)$$

und

$$\tau_e \sim \exp(U_0/T), \quad (4.19)$$

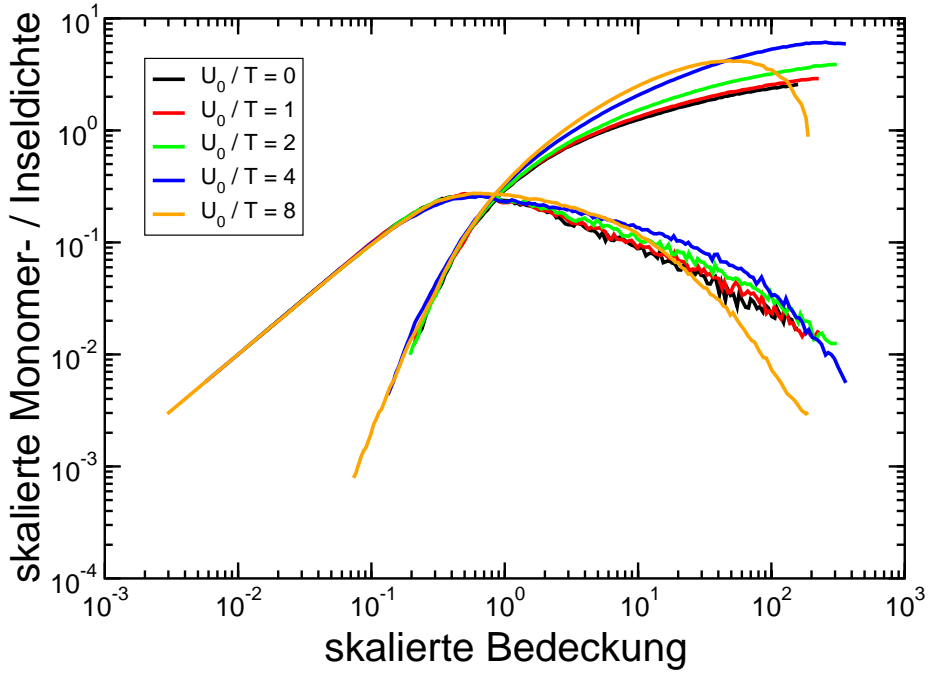


Abbildung 4.10: Skalierte Monomerdichte $\tilde{\rho}_1$ und Inselldichte $\tilde{\rho}$ aufgetragen gegen die skalierte Bedeckung $\tilde{\theta}$ mit elastischer Wechselwirkung für festes $4D/F = 10^8$, $U_0/T = 0, 1, 2, 4$ und 8 .

welche die Bewegung und Zeit bis zur Anlagerung der Monomere bestimmen. Es ist offensichtlich, dass in jedem der folgenden Fälle $U_0 \ll E_D$, $\tau_D \gg \tau_e$ und $U_0 \gg E_D$, $\tau_D \ll \tau_e$ die Anlagerungskinetik durch den langsameren der beiden Prozesse bestimmt wird.

Um skalentheoretisch die Wirkung der elastischen Repulsion mit einzubeziehen, kann man τ_D durch $\tau_D + \tau_e$ im Nenner von (4.17) ersetzen, was äquivalent zur Ersetzung

$$\frac{4D}{F} \rightarrow \frac{4D}{F} \left[1 + \exp\left(\frac{U_0 - E_D}{T}\right) \right]^{-1} \quad (4.20)$$

ist.

Solange die Wechselwirkungsstärke kleiner ist als die Diffusionsbarriere, wird die elastische Abstoßung kaum einen Effekt während der Nukleationsphase haben, wohingegen bei starker Wechselwirkung der Korrekturterm zu D/F auf der rechten Seite von (4.20) von der Größenordnung $\exp(-U_0/T)$ ist.

Unter Einbeziehung der elastischen Wechselwirkung hat die charakteristische Länge l_c die Gestalt

$$l_c = \left[\alpha f_c \left(\alpha \frac{\rho_1}{\Delta x^2} \right) \right]^{1/4} \quad (4.21)$$

mit

$$\alpha = \frac{4D}{F} \left[1 + \exp\left(\frac{U_0 - E_D}{T}\right) \right]^{-1}. \quad (4.22)$$

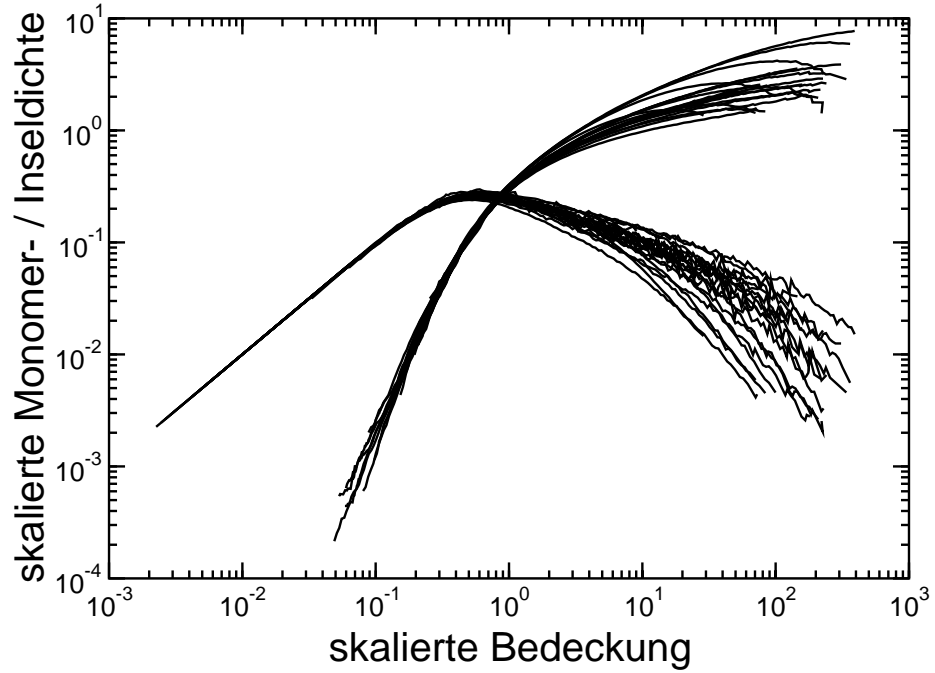


Abbildung 4.11: Skalierte Monomerdichte $\tilde{\rho}_1$ und Inseldichte $\tilde{\rho}$ aufgetragen gegen die skalierte Bedeckung $\tilde{\theta}$. Der Graph enthält alle skalierten Daten aus den Abbildungen 4.8, 4.9 und 4.10.

Abbildung 4.9 zeigt die skalierten Daten aus Abbildung 4.3 bei fester Wechselwirkungsstärke $U_0/T = 4$, während D/F über 4 Größenordnungen variiert. Der Graph in Abbildung 4.10 zeigt die Daten aus Abbildung 4.4, skaliert durch die undefinierte charakteristische Länge l_c , wie sie in Gleichung (4.21) gegeben ist. Hierbei wurde der Faktor $4D/F = 10^8$ konstant gehalten und die Wechselwirkungsstärke von $U_0/T = 0$ bis $U_0/T = 8$ variiert. In beiden Fällen skalieren die gezeigten Daten wie vorhergesagt. In Abbildung 4.11 werden sämtliche skalierten Daten aus den Abbildungen 4.8, 4.9 und 4.10 zusammengetragen.

Weil die Skalentransformation nur von α abhängt, lässt sie sich in der Form

$$\tilde{\rho}_1 = \rho_1 g_\alpha(\rho_1), \quad \tilde{\rho} = \rho g_\alpha(\rho), \quad \tilde{\theta} = \theta g_\alpha(\rho_1) \quad (4.23)$$

schreiben, wobei g_α von α abhängt.

Die Daten von Systemen mit gleichem α kollabieren unter derselben Transformation. Folglich müssen auch die unskalierten Daten identisch sein. Alle Systeme, welche die Bedingung

$$\frac{4D}{F} = \alpha \left[1 + \exp \left(\frac{U_0 - E_D}{T} \right) \right] \quad (4.24)$$

zu gleichem α erfüllen, haben dementsprechend ein identisches Tieftemperaturverhalten im Hinblick auf den Nukleationsprozess.

Dieses Resultat lässt erkennen, dass eine Schätzung der Diffusionskonstanten D aufgrund der üblichen Skalenargumente (4.8) versagt, falls elastische Effekte hinzukommen. Es stellt sich heraus, dass die tatsächliche Mobilität größer ist, als die Rechnung ohne elastische Wechselwirkung vermuten ließe. Dieser Sachverhalt wird durch die Skalenrelation (4.21) beschrieben.

4.3.4 Grenzen der Analyse

Wird die Bedeckung θ größer, gewinnt die Größe und die Geometrie der Inseln immer mehr an Bedeutung. Die Annahmen, welche zu den Gleichungen (4.13) und (4.14) geführt haben, sind dann nicht mehr gültig. Es kann nicht mehr davon ausgegangen werden, dass die Inselgröße zu vernachlässigen ist. Die Wahrscheinlichkeit für ein diffundierendes Monomer, sich an eine bestimmte Insel anzulagern, wird dann sicherlich von der spezifischen Form und Größe abhängen. Da die Anlagerung irreversibel ist, bekommen die Inseln eine fraktale Struktur, die durch elastische Effekte beeinflusst wird. Für nicht zu große Inseln sollte man eine effektive fraktale Dimension d_{eff} erwarten, die mit stärker werdender Wechselwirkung zunehmend vom klassischen DLA-Wert ≈ 1.7 in Richtung der Einbettungsdimension, der Dimension des Gitters $d = 2$ abweicht. Anschaulich bedeutet dies, dass die Inseln auf kurzen Längenskalen eine immer kompaktere Struktur bekommen [31]. Dies sollte Auswirkungen auf das Wachstum haben, da eine fraktale Insel im Vergleich zu einer kompakten Insel bei gleicher Masse einen größeren Radius aufweist.

Bei noch höheren Bedeckungen kann auch die Deposition auf die schon existierenden Inseln nicht mehr vernachlässigt werden. Diese führt zu einer schnellen Anlagerung der Monomere, die meist recht schnell den Rand der Insel erreichen und dort eingebaut werden.

Im Falle fraktaler Inseln ist die Situation ähnlich, nur können die Monomere auch noch zwischen den inneren Armen der fraktalen Struktur deponiert werden, was ebenfalls zu einem fast sofortigen Einfang des Monomers führt. Durch ihren größeren Durchmesser sollte sich bei fraktal gewachsenen Inseln der Prozess des schnellen Einfangs verstärken. Trotzdem scheint der Einfluss einer fraktalen Struktur auf die Entwicklung der Monomer- und Inseldichte in Abwesenheit der hier betrachteten elastischen Wechselwirkung relativ gering zu sein [53].

Nichtsdestoweniger ist der Einfluss fraktaler Struktur feststellbar, was das Finden von Skalengesetzen im Regime hoher Bedeckungen nicht erleichtert. Zusätzlich haben Ratengleichungen, welche die räumlichen Korrelationen unberücksichtigt lassen, üblicherweise Schwierigkeiten mit der Vorhersage einer korrekten Inselgrößenverteilung, selbst in dem Fall [53], in dem die Vorhersage der mittleren Inselgröße gelingt.

4.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde der Einfluss von elastischen Effekten auf die Nukleation von flachen Adsorbatchlustern auf einem Substrat unter Deposition mithilfe von Monte-Carlo-Methoden untersucht.

Durch die Simulationen konnte gezeigt werden, dass mit steigender elastischer Wechselwirkung U_0/T die Bildung von Inseln immer stärker behindert wird und sich die Nukleationsphase immer mehr in Richtung höherer Bedeckungen verschiebt. In dieser Hinsicht hat eine Verstärkung der elastischen Wechselwirkung einen ähnlichen Einfluss auf die Inselbildung wie eine Erhöhung des Depositionsflusses F . Dies lässt sich am zeitlichen Verhalten der Monomer- und Inseldichten ablesen.

Mit Gleichung (4.21) wurde eine neue Skalenrelation aufgestellt, welche die Stärke der elastischen Wechselwirkung U_0 , die Diffusionskonstante D und den Depositionsfluss F miteinander verknüpft. Für nicht zu große Bedeckungen konnte das Verhalten der Cluster-Dichten auf universelle Funktionen reduziert werden. Dieses Regime behält seine Gültigkeit, solange die mittlere Größe der Inseln klein gegenüber dem mittleren Inselabstand ist. Für hohe Bedeckungen schließlich ist die Inselgröße von der gleichen Größenordnung wie der Inselabstand, so dass das Zusammenwachsen der Inseln berücksichtigt werden muss.

Kapitel 5

2+1-dimensionales Wachstumsmodell

Konnten im vorigen Kapitel über das Submonolagenwachstum die Adatome als immer gleiche Punktdefekte aufgefasst werden, unabhängig davon, ob es sich um Homoepitaxie oder Heteroepitaxie handelt, so wird die Situation sehr viel komplexer, wenn man über die erste Monolage des Adsorbats hinausgeht. Ziel dieses Kapitels ist die Definition eines Modells, welches die elastischen Effekte homoepitaktischen und heteroepitaktischen Ursprungs in sich vereint und als Näherung für kleine Abweichungen von einer sonst homogenen kohärenten Adsorbatschicht verstanden werden kann.

5.1 Motivation

Die elastische Energie eines Körpers aufgrund von Kräften, welche auf der Oberfläche aufgebracht werden, ist ein kompliziertes Randwertproblem, welches sich im Allgemeinen nicht analytisch lösen lässt. Formal lassen sich die elastischen Verschiebungsfelder im Innern und auf der Oberfläche des Körper mit Hilfe einer Greenschen Funktion als lineare Reaktion auf die Kräfte ausdrücken. Damit wird aber nur die Unkenntnis der Lösung des Randwert-Problems für die elastischen Verschiebungsfelder durch die Unkenntnis der Greenschen Funktion für einen elastischen Körper mit komplizierter Geometrie ausgedrückt.

Für geringe Höhenunterschiede kann das Energiefunktional $W[h]$ eines elastischen Halbraums mit einer heteroepitaktischen Adsorbatschicht der Höhe $h(\mathbf{r})$ in Potenzen des Höhenfeldes entwickelt und als Störungsreihe in der Form

$$W[h] = \int d^2r w_h(\mathbf{r})h(\mathbf{r}) + \int \int d^2r d^2r' w_{hh}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')h(\mathbf{r})h(\mathbf{r}') + \dots$$

geschrieben werden. Ein Ansatz dieser Art soll hier verfolgt werden.

5.2 Wechselwirkung heteroepitaktischer Stufen

Eine glatte homogene Adsorbatschicht auf einem halbumendlichen Kristall hat pro Volumenelement eine bestimmte elastische Energie, die proportional zur Verzerrung ε ist. Diesen Anteil der Energie kann man in der Form

$$w_0 \int d^2r h(r)$$

schreiben. w_0 bezeichnet hierbei die konstante elastische Energiedichte pro Volumen des Adsorbatfilms. Abweichungen von der glatten Adsorbatschicht wechselwirken über ein skalares Potential $\sim 1/r^3$. Die elastische Gesamtenergie lässt sich damit schreiben als

$$W = w_0 \int d^2r h(r) - \frac{\alpha}{2} \int \int d^2r d^2r' \frac{[h(r) - h(r')]^2}{|r - r'|^3} \quad (5.1)$$

mit

$$\alpha = \frac{1 - \sigma^2}{\pi E} \tilde{D}^2. \quad (5.2)$$

$\tilde{D} \sim D/a^3 \sim \varepsilon$ ist die Kraftdipoldichte (pro Fläche und Höhe). D ist das Dipolmoment eines einzelnen Adatoms aufgrund der Verspannung. σ ist die Poisson-Zahl und E der Elastizitätsmodul.

An dieser Stelle sei bereits angemerkt, dass das chemische Potential μ durch die Variationsableitung der Energie W nach dem Höhenfeld h gegeben ist. Es gilt:

$$\mu = \frac{\delta W}{\delta h}(r) = w_0 + 2\alpha \int d^2r' \frac{h(r + r') - h(r)}{|r'|^3}. \quad (5.3)$$

Dieser Ausdruck kann für eine kleine Störung auf einer ansonsten glatten Oberfläche $h(x, y) = h_0 + \Delta \sin(kx)$ analytisch berechnet werden. Die Abhängigkeit des chemischen Potentials μ von der Wellenzahl k der Störung

$$\mu(x) = w_0 - 4\pi\alpha |k| \Delta \sin(kx) \quad (5.4)$$

liefert unter Diffusionsdynamik das charakteristische $|k|^3$ Amplitudenspektrum der Grinfeld-Instabilität [54, 55]. Die unter Spannung stehende heteroepitaktische Schicht verhält sich genauso wie ein üblicher vorgespannter elastischer Körper, welcher durch Umordnung von Material seine Energie verringern kann.

5.2.1 Zwei parallele Stufen

Ausgehend von Gleichung (5.1) lässt sich eine Wechselwirkungsenergie zwischen zwei glatten, parallel auf einer Kristalloberfläche verlaufenden Stufen berechnen. Hierbei muss zwischen dem Fall a) und dem Fall b) unterschieden werden, siehe Abbildung 5.1.

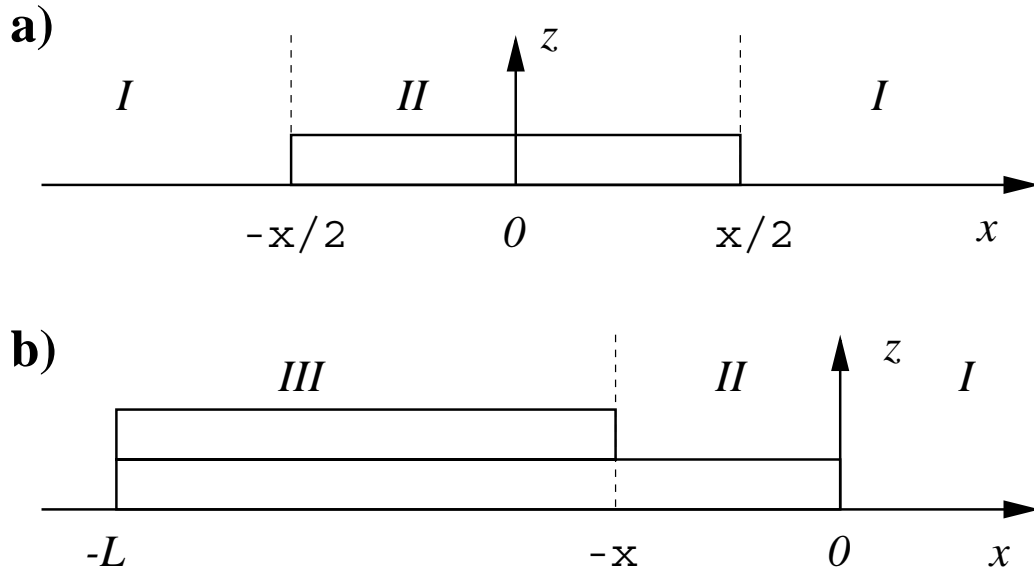


Abbildung 5.1: Querschnitt durch die betrachtete Geometrie der zwei Stufen. Der Fall a) zeigt zwei parallele ungleichnamige Stufen im Abstand ξ , der Fall b) zeigt zwei gleichnamige Stufen an den Stellen $x = -\xi$ und $x = 0$.

Vernachlässigt man den zum Adsorbatvolumen direkt proportionalen Energie-Term in (5.1), so ergibt sich für die Energie \tilde{W} eines Einheitsstreifens senkrecht zur Stufe im Fall a)

$$\tilde{W} = -\frac{\alpha}{2} \int dy' \int dx \int dx' \frac{[h(x) - h(x')]^2}{[(x - x')^2 + y'^2]^{3/2}}. \quad (5.5)$$

Führt man die y' -Integration aus, so ergibt sich mithilfe der Symmetrie

$$2 \int_a^\infty dy' \frac{1}{(\xi^2 + y'^2)^{3/2}} = \frac{2}{\xi^2} \int_{a/|\xi|}^\infty dy' \frac{1}{(1 + y'^2)^{3/2}} \quad (5.6)$$

$$= \frac{2}{\xi^2} \frac{y' - \sqrt{1 + y'^2}}{\sqrt{1 + y'^2}} \Big|_{y'=a/|\xi|}^\infty \quad (5.7)$$

$$= \frac{2}{\xi^2} \left[1 - \frac{a}{|\xi|} + \mathcal{O}\left(\frac{a^2}{|\xi|^2}\right) \right], \quad (5.8)$$

wobei aus Gründen der Übersichtlichkeit ξ anstatt von $x - x'$ geschrieben wurde. Das bedeutet, dass zwei Reihen von Kraft-Dipolen einer repulsiven Wechselwirkung unterliegen, die sich mit dem Abstand ξ wie $1/\xi^2$ verhält. Dieses Ergebnis kann man in Gleichung (5.5) einsetzen und erhält

$$\tilde{W} = -\alpha \int dx \int dx' \frac{[h(x) - h(x')]^2}{|x - x'|^2}. \quad (5.9)$$

Der Zähler des Integranden in Gleichung (5.9) ist nur positiv, wenn x im Bereich *II* und x' im Bereich *I* liegen oder umgekehrt. Mit einer Stufenhöhe a ergibt die

Integration bezüglich x von $x = -\xi/2$ bis $\xi/2$

$$\tilde{W} = -2a^2\alpha \left\{ \int_{-\infty}^{-\xi/2-a} dx' \frac{4\xi}{4x'^2 - \xi^2} + \int_{\xi/2+a}^{\infty} dx' \frac{4\xi}{4x'^2 - \xi^2} \right\} \quad (5.10)$$

$$\begin{aligned} &= -2a^2\alpha \left\{ \ln \left(\left| \frac{\xi - 2x'}{\xi + 2x'} \right| \right) \Big|_{x'=-\infty}^{-\xi/2-a} + \ln \left(\left| \frac{\xi - 2x'}{\xi + 2x'} \right| \right) \Big|_{x'=\xi/2+a}^{\infty} \right\} \\ &= -4a^2\alpha \ln \left(\frac{\xi + a}{a} \right) = -4a^2\alpha \ln \left(\frac{\xi}{a} \right) + \mathcal{O} \left(\frac{a}{\xi} \right). \end{aligned} \quad (5.11)$$

Das Ergebnis zeigt, dass die Wechselwirkung zwischen zwei gegensätzlichen Stufen repulsiven Charakter besitzt.

Der Fall von zwei gleichgerichteten Stufen, b) in Abbildung 5.1, ist etwas komplizierter zu handhaben, da die Gesamtenergie einer unendlich ausgedehnten Terrasse divergiert. Der Einfachheit halber startet die Integration über den Bereich *III* hier von einem endlichen Wert $-L$ anstatt von $-\infty$.

Die Gesamtenergie \tilde{W} lässt sich in drei Beiträge zerlegen $\tilde{W} = T_{I,II} + T_{I,III} + T_{II,III}$, die durch

$$T_{I,II} = -a^2\alpha \int_{a>0}^{\infty} dx \int_{-\xi}^0 dx' \frac{1}{|x - x'|^2}, \quad (5.12)$$

$$T_{I,III} = -a^2\alpha \int_{a>0}^{\infty} dx \int_{-L}^{-\xi} dx' \frac{4}{|x - x'|^2}, \quad (5.13)$$

$$T_{II,III} = -a^2\alpha \int_{-\xi+a}^0 dx \int_{-L}^{-\xi} dx' \frac{1}{|x - x'|^2} \quad (5.14)$$

gegeben sind. Die 4 im Zähler des Terms $T_{I,III}$ hängt mit dem Höhenunterschied von $2a$ zwischen den Bereichen *I* und *III* zusammen, während in den beiden restlichen Fällen der Höhenunterschied gleich a ist. Die Integrale können analog zum Fall a) ausgewertet und das Ergebnis in Ordnungen von a/ξ entwickelt werden. Daraus ergibt sich die Gesamtenergie der Konfiguration b) als

$$\tilde{W} \sim 4a^2\alpha \ln \left(\frac{\xi}{a} \right) - 8a^2\alpha \ln \left(\frac{L}{a} \right). \quad (5.15)$$

Daraus ist zu schließen, dass sich zwei gleichgerichtete Stufen anziehen.

5.2.2 Stufen als Liniendefekte

Im Gegensatz zur vorangegangenen Rechnung in einem volumenbasierten Modell, bei dem der Vorstellung nach jedem Adsorbatatom ein Dipolmoment zugeordnet ist, lässt sich das Problem auch auf Basis von Wechselwirkungen zwischen Linien beschreiben. In diesem Fall setzt an dem Substrat, an der als Linienelement auf

der Oberfläche idealisierten Stufe, eine Kraft an. Hat das Adsorbat eine kleinere Gitterkonstante als das Substrat, so muss der Film der Adsorbatinsel gedehnt werden. Die Gegenkraft setzt am Substrat an und hat eine Orientierung zum Innern der Insel. Basierend auf den an der Stufenkante angreifenden Kräften, lässt sich ebenfalls eine Wechselwirkungsenergie zwischen Stufen berechnen, siehe Kapitel 2.2.2.

Unter Kenntnis der Greenschen Funktion $G_{ij}(r - r')$ für einen elastischen Halbraum lassen sich die elastischen Verschiebungsfelder $u_i(r)$ aufgrund einer auf der Oberfläche lokalisierten Kraftdichte $f_j(r')$ durch Integration berechnen

$$u_i(r) = \int d^2r' G_{ij}(r - r') f_j(r'). \quad (5.16)$$

Die elastische Energie ist dann durch den Ausdruck

$$W = - \int d^2r u_i(r) f_i(r) = - \int d^2r \int d^2r' G_{ij}(r - r') f_j(r') f_i(r) \quad (5.17)$$

gegeben, siehe Gleichung (2.23).

Haben die Kräfte keine Komponente orthogonal zur Oberfläche des Halbraums, sind die Indizes i, j auf die Oberflächenkoordinaten x und y beschränkt. Die Greensche Funktion (2.24) nimmt die vereinfachte Form

$$G_{ij}(r) = \frac{1 - \sigma^2}{\pi E} \frac{1}{r} \left[\delta_{ij} + \frac{\sigma}{1 - \sigma} \frac{r_i r_j}{r^2} \right] \quad (5.18)$$

an.

Im hier betrachteten speziellen Fall paralleler Stufen sind die Kräfte senkrecht zur Stufenrichtung ausgerichtet. Für eine Stufe an der Stelle $r_x = r_x^0$ ergibt sich $f_i(r) = \pm F \delta_{ix} \delta(r_x - r_x^0)$, abhängig davon, ob die Stufe auf- oder absteigend ist. F ist hier die Kraft pro Einheitslänge der Stufe, welche an der Stufenkante ansetzt.

Innerhalb des Kraft-Monopol-Bildes unterscheiden sich die Fälle a) und b) aus Abbildung 5.1 nur durch das Vorzeichen. Im Fall a) unterscheiden sich die Kräfte an den Stufen durch das Vorzeichen, im Fall b) sind die Kräfte identisch. Im Fall a) kann die Integration bezüglich x und x' direkt ausgeführt werden. Fasst man sämtliche Vorfaktoren in einem Koeffizienten

$$\beta = \frac{1 - \sigma^2}{\pi E} F^2 \quad (5.19)$$

zusammen, so ergibt sich für zwei Stufen mit Abstand ξ die Wechselwirkungsenergie pro Einheitsstreifen dieser Anordnung mit

$$\tilde{W} = - 2 \beta 2 \int_a^L dy \frac{1}{|y|} \quad (5.20)$$

$$+ 2 \beta \int_{-L}^L dy \frac{1}{\sqrt{\xi^2 + y^2}} \quad (5.21)$$

$$+ 2 \beta \int_{-L}^L dy \frac{\sigma}{1 - \sigma} \frac{\xi^2}{(\xi^2 + y^2)^{3/2}}. \quad (5.22)$$

Der erste Faktor 2 hat seinen Ursprung in der Symmetrie zwischen x und x' . Der erste Beitrag (5.20) ist die Selbstwechselwirkung beider Stufen, der zweite (5.21) und der dritte Term (5.22) entstehen durch Wechselwirkung zwischen den beiden Stufen. Die Integrale lassen sich wie folgt auswerten:

$$\begin{aligned} 2\beta \int_a^L dy \frac{1}{|y|} &= 4\beta \ln\left(\frac{L}{a}\right) \\ 2\beta \int_{-L}^L dy \frac{1}{\sqrt{\xi^2 + y^2}} &= 4\beta \ln\left(L + \sqrt{L^2 + \xi^2}\right) - 4\beta \ln(\xi) \\ 2\beta \int_{-L}^L dy \frac{\xi^2}{(\xi^2 + y^2)^{3/2}} &= 4\beta \frac{L}{\sqrt{\xi^2 + L^2}} = 4\beta \left[1 + \mathcal{O}\left(\frac{\xi}{L}\right)\right]. \end{aligned}$$

Damit ergibt sich für die Energie das Resultat

$$\begin{aligned} \tilde{W} &= -4\beta \ln\left(\frac{\xi}{a}\right) + 4\beta \ln\left(1 + \sqrt{1 + (\xi/L)^2}\right) + 4\beta \frac{\sigma}{1 - \sigma} \\ &= -4\beta \ln\left(\frac{\xi}{a}\right) + 4\beta \left[\ln(2) + \frac{\sigma}{1 - \sigma} + \mathcal{O}\left(\frac{\xi}{L}\right)\right], \end{aligned} \quad (5.23)$$

welches sich von der Rechnung mit Kraft-Dipolen nur in der Stufen-Energie unterscheidet.

In der Geometrie b) ergibt sich ohne weitere Rechnung

$$\tilde{W} = 4\beta \ln\left(\frac{\xi}{a}\right) - 4\beta \left[\ln(2) + \frac{\sigma}{1 - \sigma} + 2\ln\left(\frac{L}{a}\right) - \mathcal{O}\left(\frac{\xi}{L}\right)\right], \quad (5.24)$$

wobei das Vorzeichen der Wechselwirkungsterme wechselt und die Selbstwechselwirkung der Stufen (5.20) unverändert bleibt. Natürlich divergiert in beiden Fällen die Energie mit der Stufenlänge L . Vergleicht man die Ergebnisse (5.23) und (5.24) mit dem Ergebnis aus dem volumenbasierten Modell (5.11) und (5.15), so stellt man fest, dass die Hauptterme identisch sind. In beiden Fällen ergibt sich die logarithmische Abstoßung oder Anziehung der Stufen. Der konstante Term $\sim 4\beta (\ln(2) + \frac{\sigma}{1 - \sigma})$ kann als Renormierung der Skala a im Argument des Logarithmus verstanden werden.

Aufgrund der unterschiedlichen Geometrie der Integrationen lässt sich die Abhängigkeit vom willkürlich gewählten kurzreichweitigen Cutoff nicht vergleichen. Es handelt sich hierbei aber um kurzreichweitige Details. Das langreichweitige generische Verhalten des durch Gleichung (5.1) definierten Modells ist mit dem hier auf der Basis von Liniendefekten abgeleiteten Verhalten (5.24) identisch.

5.2.3 Kraft-Monopol und assoziierter Kraft-Dipol

Offensichtlich können die Kraft-Dipole D so gewählt werden, dass für die Stufenwechselwirkung $\beta = a^2\alpha$ gilt. Dennoch ist es sinnvoll, den Zusammenhang auch anschaulich zu motivieren. Die elastische Energie w_0 einer in x und y -Richtung homogen

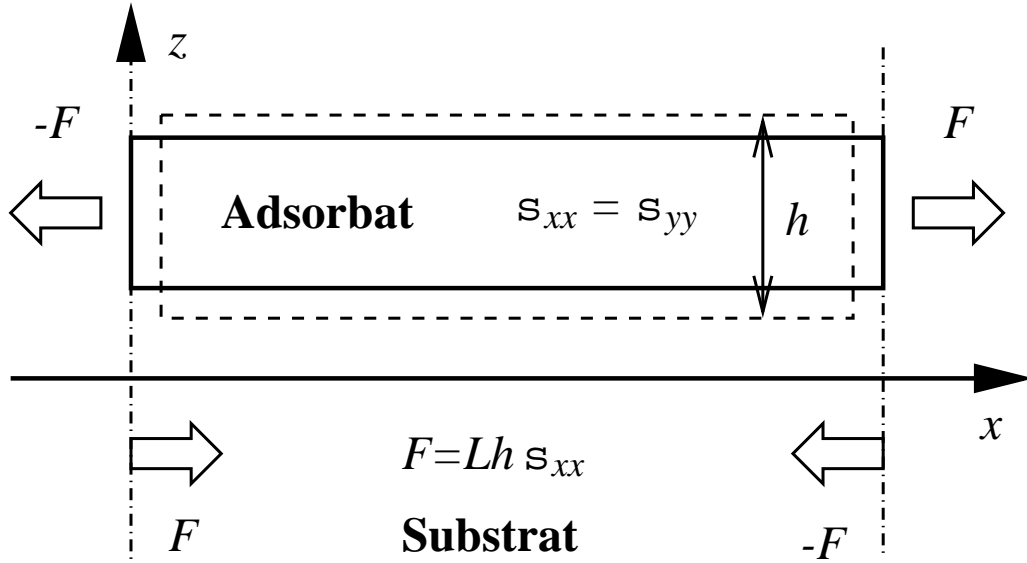


Abbildung 5.2: Ein kohärenter heteroepitaktischer Adsorbatfilm ist elastisch verzerrt, damit er den Gitterabstand des Substrats erreicht. Die Skizze zeigt die Kräfte, die auf das Adsorbat und Substrat wirken.

verspannten Adsorbatschicht mit Verzerrung ε ist zunächst gegeben durch

$$w_0 = \frac{E}{1 - \sigma} \varepsilon^2. \quad (5.25)$$

Die Verzerrung ε ist hierbei durch den relativen Fehler der Gitterkonstanten von Adsorbat und Substrat $\varepsilon = \delta a/a$ gegeben.

Das Adsorbat wird von Kräften $F = Lh\sigma_{xx}$ gedehnt oder komprimiert, welche vom Substrat kompensiert werden müssen. Bei einer homogen verzerrten Adsorbatschicht müssen diese Kräfte am Rand der Lage angreifen. Nimmt man nun an, dass die Adsorbatschicht eine mikroskopische Ausdehnung hat, das heißt $h = L = a$, kann man deren Kraft-Dipolmoment bestimmen:

$$D_{xx} = F \frac{a}{2} + (-F) \frac{(-a)}{2} = F a = D_{yy}. \quad (5.26)$$

Weist man nun jedem Adsorbatatom das Dipolmoment $D = F a$ zu, ergibt sich ganz zwanglos der erwartete Zusammenhang $a^2\alpha = \beta$.

5.3 Wechselwirkung homoepitaktischer Stufen

Im Gegensatz zur heteroepitaktischen Wechselwirkung, welche makroskopischen Ursprungs ist und bei der bekannt ist, dass die Stärke proportional zur Gitterfehlانpassung $\delta a/a$ von Adsorbat und Substrat ist, kann man über die Stärke der homoepitaktischen Wechselwirkung zwischen Stufen nur wenig sagen, da sie mikroskopischen

Ursprungs ist und ihre Stärke von den Details der atomaren Bindungen an der Stufe abhängt.

Diese elastische homoepitaktische Wechselwirkung zwischen Stufen auf einem halbunendlichen Kristall kann durch elastische Kraft-Dipole beschrieben werden, welche an der Stufenkante lokalisiert sind [16, 17, 40, 56].

Ausgehend von der elastischen Energie

$$\begin{aligned} W_{\text{el}} &= - \int d^2r u_i(\mathbf{r}) f_i(\mathbf{r}) \\ &= - \int \int d^2r d^2r' G_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') f_j(\mathbf{r}') f_i(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (5.27)$$

als Reaktion auf eine Kraftdichte $f_i(\mathbf{r})$ kann man die an den Stufenkanten lokalisierten Kraftdichten, deren Monopolmoment verschwindet, durch den nächsten nichtverschwindenden Term der Multipolentwicklung charakterisieren. So kommt man zu einer Beschreibung der elastischen Energie aufgrund einer Kraft-Dipol-Dichte $q_{ik}(\mathbf{r})$

$$W_{\text{el}} \approx \int \int d^2r d^2r' q_{jk}(\mathbf{r}') q_{il}(\mathbf{r}) \partial_k \partial_l G_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (5.28)$$

Mithilfe von makroskopischen Symmetrieargumenten kann man zwei Klassen von Kraft-Dipol-Tensoren bestimmen, die an einer Stufe auftreten können [16].

Der eine Typ hat seine Ursache in Kräften innerhalb der Oberflächenebene in Richtung der Stufen-Normalen, der andere entsteht aufgrund von Kräften senkrecht zur Kristalloberfläche [16, 56]. Ersterer verursacht eine repulsive Wechselwirkung zwischen Stufen, letzterer verursacht eine Wechselwirkung, deren Vorzeichen davon abhängt, ob es sich um gleichgerichtete (auf-auf bzw. ab-ab) oder entgegengesetzte Stufen (auf-ab bzw. ab-auf) handelt. Obwohl im Prinzip beide Typen in Kombination auftreten, gibt es Materialien [57, 58] bei denen der vorzeichenabhängige Beitrag vernachlässigt werden kann. Sucht man insbesondere nach einem Gegenspieler zur heteroepitaktischen Anziehung zwischen gleichnamigen Stufen, so macht es Sinn, sich auf den vorzeichenunabhängigen Typ zu konzentrieren.

Für eine in y -Richtung verlaufende Stufe kann für den Dipoltensor an der Stufe ein Verhalten der Form $Q_{ij} = \tilde{Q} \delta_{ix} \delta_{jx}$ angenommen werden, wobei im Folgenden die Annahme gemacht wird, dass Kräfte senkrecht zur Kristalloberfläche verschwinden. Es ist zunächst festzustellen, dass der Tensor Q_{ij} nicht invariant unter Drehungen in der Kristallebene ist. Aufgrund des Tensorcharakters hängt die Wechselwirkung zwischen zwei dieser Kraft-Dipole von zwei Winkeln ab.

Im Falle zweier paralleler Stufen mit Abstand ξ ergibt sich für $Q_{ij} = \tilde{Q} \delta_{ix} \delta_{jx}$ die Wechselwirkungsichte (pro Fläche zum Quadrat)

$$w(r, \phi) = \gamma \left[\frac{3 \cos(\phi) - 1}{|r|^3} + \frac{\sigma}{1 - \sigma} \frac{2 + 15 \cos(\phi)^4 - 15 \cos(\phi)^2}{|r|^3} \right], \quad (5.29)$$

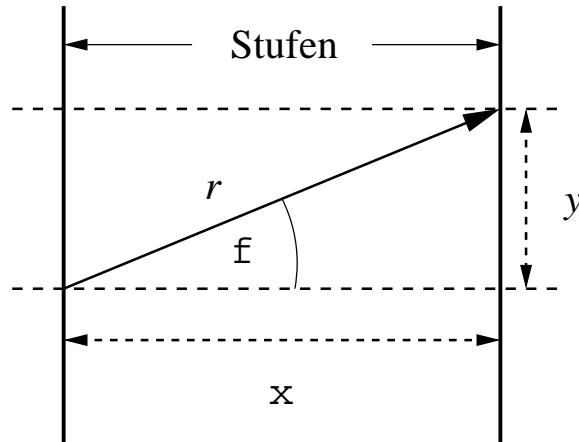


Abbildung 5.3: Die Skizze zeigt die Definition der Größen ϕ , r , ξ und y .

wobei ϕ der Winkel zwischen der Stufennormalen und dem Abstandsvektor \mathbf{r} ist. Der Faktor γ ist in diesem Falle gegeben durch

$$\gamma = \frac{1 - \sigma^2}{\pi E} \tilde{Q}^2, \quad (5.30)$$

mit $\tilde{Q} = Q/a$, dem Dipolmoment pro Einheitslänge der Stufe. Q entspricht dem Dipolmoment, der einem einzelnen Atom an der Stufenkante zugeordnet ist.

Im Fall der parallelen Stufen ergibt sich ϕ folglich aus dem Abstand der Stufen ξ und dem Offset y der betrachteten Dipole entlang der Stufen zu $\phi = \arctan(y/\xi)$, siehe Abbildung 5.3. Analog zu vorangegangenen Rechnungen besteht die Energie der zwei Stufen aus drei Beiträgen

$$\tilde{W} = - 2\gamma 2 \int_a^\infty dy \frac{1}{|y|^3} \quad (5.31)$$

$$+ 2\gamma \int_{-\infty}^\infty dy \frac{3 \cos(\phi) - 1}{(\xi^2 + y^2)^{3/2}} \quad (5.32)$$

$$+ 2\gamma \int_{-\infty}^\infty dy \frac{\sigma}{1 - \sigma} \frac{2 + 15 \cos(\phi)^4 - 15 \cos(\phi)^2}{(\xi^2 + y^2)^{3/2}}. \quad (5.33)$$

Diese Integrale können einzeln ausgewertet werden:

$$-2\gamma 2 \int_a^\infty dy \frac{1}{|y|^3} = -2\gamma \frac{1}{a^2},$$

$$2\gamma \int_{-\infty}^\infty dy \frac{3 \cos(\phi) - 1}{[\xi^2 + y^2]^{3/2}} = 4\gamma \frac{1}{\xi^2},$$

$$2\gamma \frac{\sigma}{1 - \sigma} \int_{-\infty}^\infty dy \frac{2 + 15 \cos(\phi)^4 - 15 \cos(\phi)^2}{[\xi^2 + y^2]^{3/2}} = 4\gamma \frac{\sigma}{1 - \sigma} \frac{1}{a^2}.$$

Zusammengenommen ergeben diese Terme die Wechselwirkungsenergie

$$\tilde{W} = 4\gamma \frac{1}{\xi^2} - 2\gamma \frac{1}{a^2} \frac{1-2\sigma}{1-\sigma}. \quad (5.34)$$

Im Vergleich dazu führt eine einfache skalare $1/r^3$ Wechselwirkung, die isotropen Dipol-Tensoren entspricht, zum folgenden Resultat:

$$\tilde{W}_{\text{scalar}} = 4\gamma \frac{1}{\xi^2} + 2\gamma \frac{1}{a^2}. \quad (5.35)$$

In dieser spezifischen Geometrie der zwei Stufen zeigt sich der Unterschied zwischen isotropen und nicht-isotropen Dipol-Tensoren nur in einer unterschiedlichen Linienenergie.

5.3.1 Gleichgewichtsabstand von Stufen

Da die heteroepitaktische logarithmische Wechselwirkung zwischen gleichnamigen Stufen anziehend und die hier betrachtete homoepitaktische Wechselwirkung abstoßend ist, definiert dieses Wechselspiel den Gleichgewichtsabstand zwischen Stufen, bei dem sich beide Effekte kompensieren. Ist die Energie von zwei Stufen gleichen Typs durch

$$W \sim 4a^2\alpha \ln(\xi/a) + 4\gamma\xi^{-2} \quad (5.36)$$

gegeben, so ist der Gleichgewichtsabstand der Stufen durch

$$\frac{\xi}{a} = \sqrt{\frac{2\gamma}{\alpha}} = \sqrt{2} \frac{Q}{D} \quad (5.37)$$

bestimmt. Diese Länge macht nur Sinn, wenn der repulsive Effekt im Vergleich zur Anziehung stark genug ist und $\xi \geq a$ gilt. An dieser Stelle ist anzumerken, dass die Wechselwirkung zwischen Monopol- und Dipolmomenten in Gleichung (5.36) nicht außer Acht gelassen wurden. Die beiden zusätzlichen Beiträge haben bei gleichnamigen Stufen umgekehrte Vorzeichen und kompensieren sich.

5.4 Kombiniertes Modell

Im Hinblick auf die angestrebte Anwendung in Monte-Carlo-Simulationen ist es vorteilhaft, in einer teilchenorientierten Betrachtungsweise zu bleiben. In den vorangehenden Kapiteln wurde zunächst die heteroepitaktische Wechselwirkung zwischen Stufen auf Dipol-Ladungen der Atome in der Schicht zurückgeführt. In ähnlicher Weise lässt sich die repulsive homoepitaktische Stufenwechselwirkung ebenfalls näherungsweise durch isotrope Dipol-Ladungen an den Stufen modellieren. Ziel des folgenden Abschnittes ist es, diese beiden Effekte zu einem Modell zusammenzuführen.

An dieser Stelle sollte betont werden, dass es aus systematischer Sicht keine Schwierigkeiten macht, die Winkelabhängigkeiten der elastischen Wechselwirkung mitzunehmen. Viel entscheidender für die praktische Anwendung ist die Frage, ob die Komponenten der Dipoltensoren unterschiedliche Vorzeichen aufweisen, ob sich beispielsweise bei gegensätzlichen Stufen die Vorzeichen der Komponenten unterscheiden. Dies könnte dazu führen, dass sich die Dipol-Tensoren auf makroskopischer Skala kompensieren und nur Momente höherer Ordnung übrigbleiben. In der numerischen Behandlung wäre dies aufwendiger als die Behandlung der Dipole, für die der in Kapitel 5.7 beschriebene Multigrid-Algorithmus ausgelegt ist.

5.4.1 Modelldefinition

Man stelle sich ganze Lagen oder einzelne Atome eines Adsorbats auf einer sonst glatten Kristalloberfläche mit Gitterkonstante a vor. Nimmt man an, dass sich das Adsorbat kohärent ohne Bildung von Versetzungen anlagert, so ist ein glatter heteroepitaktischer Adsorbatfilm aufgrund der Gitterfehlانpassung $\delta a/a$ homogen gedehnt. Die elastische Energie dieser Konfiguration ist proportional zum Adsorbatvolumen und zu w_h , der Energie pro Einheitsvolumen eines glatten Films. Diese Größe hängt von der Gitterfehlانpassung $\delta a/a$ ab.

Abweichungen von der Form des glatten Adsorbatfilmes führen zu Kräften, die am Substrat angreifen. In diesem Sinne ist das Modell verwandt mit dem Ansatz von Tersoff [9, 10]. Auf Basis der Abweichungen von einem glatten Adsorbatfilm werden im Folgenden die Dichten von Kraft-Dipolen und deren Wechselwirkung definiert. Aufgrund dieser Kraft-Dipol-Dichten ist es möglich, die elastische Energie auf Basis einer Paar-Wechselwirkung zwischen einzelnen Adsorbatatomen zu verstehen.

5.4.2 Wechselwirkende Kraft-Dipol-Dichten

Die Wirkung der Gitterfehlانpassung zwischen Adsorbat und Substrat wird in diesem Modell durch ein Feld von isotropen Kraft-Dipolen $h(r)$ ausgedrückt, welches proportional zu der Höhe der Adsorbatschicht ist. Für die Wechselwirkung zwischen den Feldern sind jedoch nicht die absoluten Werte sondern die Höhenunterschiede von Bedeutung. Ein zweites Kraft-Dipol-Feld $q(r)$ hat seinen Ursprung in der Existenz von Stufen. Durch dieses Feld werden die Kraftdipole an den Stufenkanten berücksichtigt.

Ist die auf das Substrat wirkende Dichte von Kraft-Dipolen definiert, so lässt sich die elastische Energie des Substrats mit Hilfe der Greenschen Funktion des unendlichen elastischen Halbraums berechnen. Da die elastische Wechselwirkung zwischen zwei elastischen Dipolen mit dem Abstand r wie r^{-3} abfällt, kann die elastische Wechselwirkungsenergie W im Rahmen dieses Modells in der Form

$$W \sim \frac{1}{2} \int \int d^2r d^2r' \frac{hh' + hq' + h'q + qq'}{(r - r')^3}$$

geschrieben werden, wobei wir uns zunächst keine Gedanken um die formale Divergenz des $1/r^3$ Terms zu machen brauchen. Sämtliche folgenden Schritte sind unabhängig von der konkreten Form des Wechselwirkungspotentials. Die Striche wurden hier verwendet, um zwischen verschiedenen Argumenten r und r' der Feldgrößen h und q zu unterscheiden. h' ist damit nur eine Abkürzung für $h(r')$.

Um eine Unabhängigkeit von der Schichtdicke zu gewährleisten, muss von obigem Ausdruck noch die Selbstwechselwirkung der Dipoldichten abgezogen werden. Dies lässt sich in einfacher Weise erreichen, indem man den Term $hh + 2hq$ von obigem Ausdruck abzieht. Somit lässt sich die Wechselwirkungsenergie als

$$W \sim -\frac{1}{4} \int \int d^2r d^2r' \frac{(h + q - h' - q')^2 - 2q^2}{(r - r')^3}$$

schreiben. Dieser Ausdruck ist invariant unter der Transformation $h(r) \rightarrow h(r) + h_0$. Es verbleibt die Selbstenergie des q -Feldes, welche im Prinzip ebenfalls eliminiert werden kann. In diesem Falle müsste die Gesamtenergie aber um eine lineare Selbstenergie der Stufen

$$w_q \int d^2r q$$

ergänzt werden. Dies ist jedoch nur von Bedeutung, falls sich die Dipol-Ladungen an den Stufenkanten unterscheiden. Ist das Feld q proportional zur absoluten Höhendifferenz, so kann es zum Beispiel relevant sein, ob eine Stufe mit einer Höhendifferenz von zwei Adsorbatlagen die doppelte Selbstenergie einer einfachen Stufe wie im Falle eines linearen Terms, oder aber die vierfache Energie wie im Falle des quadratischen Terms trägt. Unabhängig davon, wie man sich hier entscheidet, führt die Wechselwirkung der Dipolladungen entlang ein und derselben Stufenkante zu einem Beitrag der Stufenenergie, welcher sich auf diesem Wege nicht wegtransformieren lässt.

Wir belassen es hier bei der quadratischen Selbstenergie des q -Feldes und können dann die elastische Energie des Systems in der folgenden Form schreiben

$$W[h(r), q(r)] = w_h \int d^2r h(r) \quad (5.38)$$

$$- \frac{\alpha}{4} \int \int d^2r d^2r' \frac{(h + q - h' - q')^2 - 2q^2}{(r - r')^3}. \quad (5.39)$$

Wir nehmen jedoch an, dass wesentliche qualitative Effekte von der Wahl der Selbstenergie des q -Feldes unabhängig sind.

Es ist aufschlussreich, die Variation der δW der elastischen Energie bezüglich δh und δq auszuführen,

$$\delta W[h, q] = w_h \int d^2r \delta h \quad (5.40)$$

$$- \alpha \int \int d^2r d^2r' \frac{[h + q - h' - q'] \delta h}{(r - r')^3} \quad (5.41)$$

$$- \alpha \int \int d^2r d^2r' \frac{[h - h' - q'] \delta q}{(r - r')^3}. \quad (5.42)$$

Vernachlässigt man die Wirkung der Stufenladungen, so erhält man für eine sinusartige Störung der Schichtdicke, $\delta h = \Delta \sin(kx)$, das chemische Potential

$$\mu = \frac{\delta W[h, q]}{\delta h} \sim w_h - \alpha \int d^2 r' \frac{[h - h']}{(r - r')^3} \sim w_h - \Delta \alpha |k| \sin(kx).$$

Diese $|k|$ -Abhängigkeit des chemischen Potentials führt bei einer gespannten Adsorbatschicht zur so genannten Asaro-Tiller-Grinfeld Instabilität [54, 55, 59].

5.4.3 Diskretisiertes Gitter-Modell

Will man obigen Hamiltonian (5.38) für ein Gitter-Modell verwenden, so muss man von Integralen zu Summen übergehen. Gleichzeitig ist man in der Realisierung des Modells dazu gezwungen, die $1/r^3$ -Wechselwirkung der Dipol-Ladungen zu regularisieren, um zu einer endlichen Selbstenergie zu kommen. Hierzu definieren wir eine modifizierte Wechselwirkung $\Psi(r)$, welche für kleine in Einheiten der Gitterkonstanten a gemessene Abstände $r < 1$ zunächst den Wert 1 annimmt

$$\Psi(r) = \begin{cases} r^{-3} & \text{für } r \geq 1 \\ 1 & \text{für } r < 1 \end{cases} . \quad (5.43)$$

Mit diesen Modifikationen lässt sich die elastische Energie als

$$W[h, q] = w_h \sum_i h_i - \frac{\alpha}{4} \sum_{i \neq j} [(h_i + q_i - h_j - q_j)^2 - 2q_i^2] \Psi(r_{ij}) \quad (5.44)$$

schreiben. Dabei ist h_i einfach um das diskretisierte Form des Feldes $h(r)$ am Gitterplatz i und r_{ij} der Abstand zwischen den Gitterplätzen i und j .

5.5 Zuordnung der Dipol-Ladungen

Das Feld h_i ist proportional zur Höhe $z(r)$ des Adsorbats am Gitterplatz i . Die Anzahl der Kantenladungen definieren wir über die Anzahl der an einen Gitterplatz grenzenden Höhendifferenzen. Formal lässt sich dies durch den Ausdruck

$$q_k = \frac{1}{a} \sum_{\langle i, j \rangle} |h_i - h_j| \delta_{ik} \quad (5.45)$$

schreiben. Abbildung 5.4 zeigt die Verteilung der Dipol-Ladungen gemäß Gleichung (5.45). Diese Art der Zuordnung erhält die Symmetrie zwischen Inseln und Löchern. Eine Konfiguration mit einem einzelnen Adatom auf einem ebenen Substrat hat damit dieselbe Energie wie die Konfiguration mit einem Loch, d. h. einem fehlenden Atom in der obersten Lage.

Diese Definition ist jedoch unpraktisch, um Rechnungen von Hand durchzuführen. Deshalb definieren wir an dieser Stelle eine alternative Zuordnungsvorschrift, welche

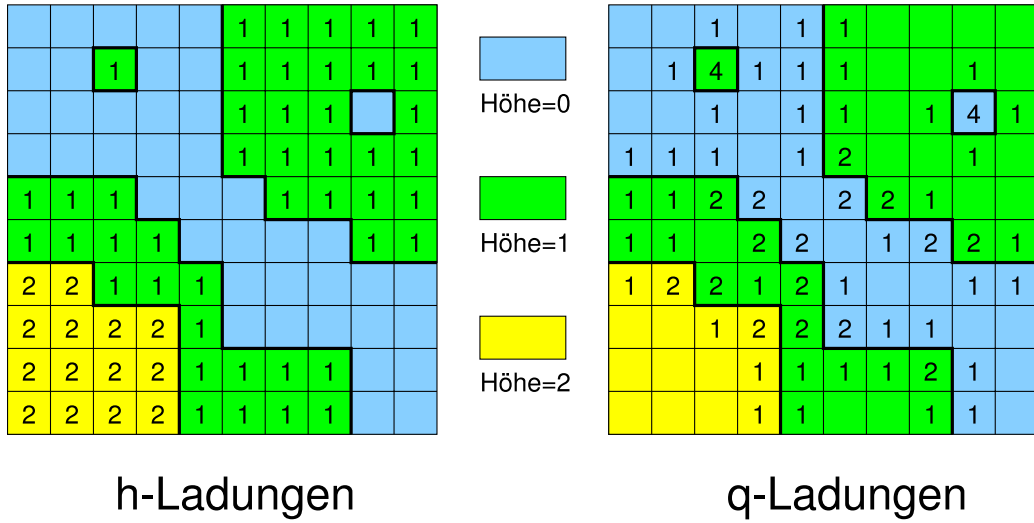


Abbildung 5.4: Zugeordnete Dipol-Ladungen des h -Feldes (links) und des q -Feldes (rechts) in Einheiten des jeweiligen Ladungsquants. Null-Ladungen sind nicht notiert. Die Zuordnungsvorschrift für die Dipol-Ladungen des q -Feldes gewährleistet gemäß Gleichung (5.45) eine Symmetrie zwischen Löchern und Inseln.

die Berechnungen im folgenden Kapitel wesentlich erleichtert. Dabei soll das q -Feld am Gitterplatz i eine Ladung tragen, falls ein Adsorbatatom an diesem Platz mindestens eine gebrochene Bindung besitzt. Formal gilt also für das folgende Kapitel 5.6

$$q_k = \min \left[1, \sum_{\langle i,j \rangle} \max(h_i - h_j, 0) \delta_{ik} \right]. \quad (5.46)$$

Auf diese Weise trägt sowohl ein einzelnes Adsorbatatom auf einer sonst glatten Oberfläche als auch eine Stufenkante ein zusätzliches Dipolmoment. Die Definition der h_i bleibt unverändert. Es ist zu erwarten, dass sich die in Kapitel 5.6 von Hand berechneten Energien der Beispielkonfigurationen auf kleinen Abständen gegenüber Gleichung (5.45) ändern. Das Verhalten auf großen Längenskalen kann sich durch diese lokale Modifikationen nicht ändern. Es ist anzumerken, dass diese Form der Wechselwirkung modellhaft zu verstehen ist. Die mikroskopischen Details spielen eine untergeordnete Rolle. Im nächsten Abschnitt werden wir zeigen, dass der gewählte Ausdruck eine Vielzahl von Grenzfällen korrekt reproduziert.

5.6 Grenzfälle

In den folgenden Abschnitten werden beispielhaft von Hand einige einfache Konfigurationen im diskreten Modell berechnet um zu sehen, ob sich das Modell wie erwartet verhält. Insbesondere wird der Unterschied zwischen auftretenden Summen und einer Integralnäherung beleuchtet. Hierbei wird eine Verteilung der Ladungen an den Stufenkanten gemäß Gleichung (5.46) angenommen.

5.6.1 Einzelnes Adsorbatatom auf einem Substrat

Im Falle eines einzelnen Adsorbatatoms am Gitterplatz k auf einem sonst glatten Substrat sind die Dipol-Felder gemäß der oben definierten Regel durch $h_i = \tilde{h}\delta_{ik}$ und $q_i = \tilde{q}\delta_{ik}$ gegeben. Die elastische Energie ergibt sich somit als

$$W[h, q] = w_h \tilde{h} - \frac{\alpha}{2}(\tilde{h}^2 + 2\tilde{h}\tilde{q}) \sum_{i \neq k} \Psi(r_{ik}) + \frac{\alpha}{2}\tilde{q}^2 \Psi(0).$$

Die Bedeutung der verschiedenen Beiträge ist wie folgt: Interpoliert man das Adsorbatatom als makroskopische Adsorbatschicht, so ist für diese kohärente, homogen gespannte Schicht elastische Energie aufzubringen. Aufgrund der räumlichen Inhomogenität der Konfiguration kommt es jedoch zu einer Korrektur, die die elastische Energie verringert. Durch die mikroskopischen Stufen rund um das adsorbierte Atom kommt es zu einem nicht verschwindenden Dipolfeld q , welches mit dem Feld h wechselwirkt und zusätzlich eine Selbstenergie besitzt.

Betrachtet man zusätzlich zu den hier aufgeführten elastischen Energiebeiträgen auch Oberflächen- oder Bindungsenergie, so kann im Allgemeinen der Beitrag der Selbstenergie als lokaler Effekt mit Bindungsenergien verrechnet werden. Auf diese Weise ergeben sich Korrekturen zur Linienenergie einer Stufe.

5.6.2 Zwei Adsorbatatome auf einem Substrat

Besteht die Konfiguration aus zwei Adsorbatatomen an den Gitterplätzen $k \neq l$, so sind die Dipolfelder $h_i = \tilde{h}(\delta_{ik} + \delta_{il})$ und $q_i = \tilde{q}(\delta_{ik} + \delta_{il})$ gegeben. Damit stellt sich die elastische Energie wie folgt dar:

$$W[h, q] = 2 w_h \tilde{h} - \alpha(\tilde{h}^2 + 2\tilde{h}\tilde{q}) \sum_{i \neq k} \Psi(r_{ik}) + \alpha\tilde{q}^2 \Psi(0) + \alpha(\tilde{h} + \tilde{q})^2 \Psi(r_{kl}).$$

Abgesehen von der zweifachen Energie des schon betrachteten einzelnen Atoms tritt hier zusätzlich der erwartete Wechselwirkungsterm auf, der vom Abstand r_{kl} wie $\Psi(r) \sim r^{-3}$ abhängt.

5.6.3 Zwei parallele Stufen auf einem Substrat

Für zwei parallele auf der Substratoberfläche verlaufende Stufen der Länge L im Abstand ξ nehmen die Dipol-Felder die Form

$$h_{i=(x,y)} = \begin{cases} \tilde{h} & 0 \leq x < \xi \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}, \quad (5.47)$$

$$q_{i=(x,y)} = \begin{cases} \tilde{q} & x \in \{0, \xi - 1\} \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (5.48)$$

an. Aufgrund der einfacheren Rechnung wurden hierbei Stufen mit gegensätzlichen Vorzeichen angenommen. Die elastische Energie ergibt sich hiermit zu

$$W[h, q] = L\xi w_h \tilde{h} - \frac{\alpha}{4} \sum_{i,j} [(h_i - h_j)^2 + 2(q_i - q_j)(h_i - h_j) - 2q_i q_j]^2 \Psi(r_{ij}).$$

Während der erste Term wieder die elastische Energie der homogen verspannten Adsorbatschicht zwischen den Stufen repräsentiert, führt der zweite Term zu Korrekturen, die als Monopol-Wechselwirkung und Dipol-Wechselwirkung zwischen Stufen sowie als Monopol-Dipol-Wechselwirkung zwischen Stufen bekannt sind.

Um eine einfache Notation zu gewährleisten ist es zweckmäßig, Summationsgebiete mit Namen zu kennzeichnen. S bezeichnet das Gebiet zwischen den Stufen. L_1, L_2 werden die Linien entlang der Stufen, genauer der Stufenoberkante sein, folglich gilt für $L_1, L_2 \subset S$.

h - h -Terme

Aus dem Wechselwirkungsterm des h -Feldes ergibt sich die Monopol-Wechselwirkung zwischen Stufen

$$W_{hh} = -\frac{\alpha}{4} \sum_{i,j} (h_i - h_j)^2 \Psi(r_{ij}) = -\frac{\alpha}{2} \tilde{h}^2 \sum_{\substack{i \in S \\ j \notin S}} \frac{1}{r_{ij}^3}. \quad (5.49)$$

Um das asymptotische Verhalten dieses Ausdrucks zu bestimmen, ist es sinnvoll, die Summe durch ein Integral zu nähern und das Ergebnis mit der numerischen ausgewerteten Summe zu vergleichen. Man erhält auf diese Weise

$$-\frac{W_{hh}}{\alpha} = \tilde{h}^2 L \sum_{\substack{i = (0 \leq x < \xi, y = 0) \\ j = (x' \geq \xi, y')}} \frac{1}{r_{ij}^3} \sim \tilde{h}^2 L \int_0^{\xi-1} dx \int_{\xi}^{\infty} dx' \int_{-\infty}^{\infty} dy' \frac{1}{[(x - x')^2 + y'^2]^{3/2}}.$$

Das Integral kann einfach ausgewertet werden:

$$\int_0^{\xi-1} dx \int_{\xi}^{\infty} dx' \int_{-\infty}^{\infty} dy' \frac{1}{[(x - x')^2 + y'^2]^{3/2}} = 2 \ln(\xi).$$

Der Abstand ξ der Stufen ist hier in Einheiten der Gitterkonstante a gemessen. Berücksichtigt man das Vorzeichen des Wechselwirkungsterms, so ergibt sich eine logarithmische Abstoßung zwischen den beiden gegensätzlichen Stufen. Diese Wechselwirkung bezeichnet man üblicherweise als Monopol-Wechselwirkung von Stufen.

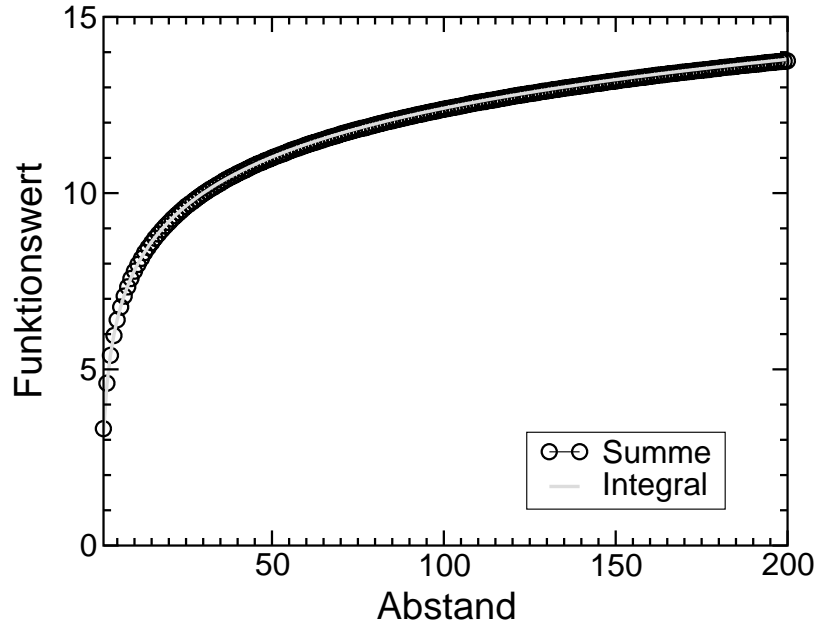


Abbildung 5.5: Wert der numerischen Summe f_{mm}^{SUM} und der Integralnäherung f_{mm}^{INT} gegen Abstand ξ , für $f_{mm}^0 \approx 3.2$. Man findet gute Übereinstimmung mit dem asymptotischen Verhalten $\sim \ln(\xi)$.

Um dieses Ergebnis mit der numerischen Summation vergleichen zu können, definieren wir die Größen $f_{mm}^{INT/SUM}$ durch

$$f_{mm}^{INT} = 2 \ln(\xi) + f_{mm}^0; \quad f_{mm}^{SUM} = \sum_{\substack{i = (0 \leq x < \xi, y = 0) \\ j = (x' \geq \xi, y')}} \frac{1}{r_{ij}^3}.$$

Nun lassen sich f_{mm}^{INT} und f_{mm}^{SUM} vergleichen, siehe Abbildung 5.5. Die Konstante $f_{mm}^0 \approx 3.2$ steht in Zusammenhang mit der einen Linie, die in der Integralnäherung ausgelassen wurde. Die entsprechende Summe kann mit

$$s_{a,h} = \sum_{x>0,y} \frac{1}{(x^2 + y^2)^{3/2}} \approx 3.3 \quad (5.50)$$

angegeben werden. Die Asymptotik wird somit durch die Integral-Näherung sehr gut wiedergegeben, während die kurzreichweitigen Beiträge gesondert behandelt werden müssen.

Verwendet man diese Definitionen, kann der Monopol-Beitrag zur Wechselwirkungsenergie in der Form

$$W_{hh} \sim -\alpha \hbar^2 L f_{mm}(\xi) \approx -\alpha \hbar^2 L [2 \ln(\xi) + 3.2] \quad (5.51)$$

geschrieben werden.

q - q -Terme

Das q -Feld führt auf die so genannte Dipol-Wechselwirkung zwischen Stufen. Das Vorgehen ist analog zur h - h -Wechselwirkung. Wir stellen zunächst fest, dass

$$W_{qq} = \frac{\alpha}{4} \sum_{i,j} 2q_i q_j \Psi(r_{ij}) = \alpha \tilde{q}^2 \left\{ \sum_{i,j \in L_1} \Psi(r_{ij}) + \sum_{\substack{i \in L_1 \\ j \in L_2}} \frac{1}{r_{ij}^3} \right\}$$

gilt. Der erste der beiden Terme ist die Selbstwechselwirkung der Stufe aufgrund der Dipol-Ladungen q . Es ist zweckmäßig, die Summe direkt numerisch auszuwerten

$$L \tilde{q}^2 \left\{ 1 + 2 \sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{i^3} \right\} \approx L \tilde{q}^2 \{1 + 2.40\} = 3.4 L \tilde{q}^2.$$

Der zweite Term ergibt

$$\begin{aligned} \tilde{q}^2 L \sum_{\substack{i=(x=0, y=0) \\ j=(x'=\xi-1, y')}} \frac{1}{r_{ij}^3} &\approx \tilde{q}^2 L \int_{-\infty}^{\infty} dy' \frac{1}{[(\xi-1)^2 + y'^2]^{3/2}} \\ &= L \frac{2\tilde{q}^2}{(\xi-1)^2} = L \frac{2\tilde{q}^2}{\xi^2} + \mathcal{O}(\xi^{-3}). \end{aligned}$$

Dieser Term drückt die Dipolwechselwirkung zwischen den Stufen aus. Berücksichtigt man alle Vorzeichen, so ist diese Wechselwirkung repulsiv.

Zum Vergleich von Integral und numerischer Summe definieren wir $f_{dd}^{INT/SUM}$ durch

$$f_{dd}^{INT} = \frac{2}{\xi^2}; \quad f_{dd}^{SUM} = \sum_{\substack{i=(x=0, y=0) \\ j=(x'=\xi-1, y')}} \frac{1}{r_{ij}^3}. \quad (5.52)$$

Abbildung 5.6 zeigt einen Vergleich zwischen Integralnäherung f_{dd}^{INT} und der tatsächlichen Summe f_{dd}^{SUM} . Die Terme zeigen gute Übereinstimmung. Unter Verwendung dieser Ausdrücke kann der q -Wechselwirkungsbeitrag zur elastischen Energie in der Form

$$W_{qq} \approx \alpha \tilde{q}^2 L [f_{dd}(\xi) + f_{dd}^0] \quad (5.53)$$

mit $f_{dd}^0 \approx 3.4$ geschrieben werden.

 h - q -Terme

Zusätzlich zu den reinen h - h - und q - q -Wechselwirkungen treten auch gemischte Terme auf. Diese führen zu einer Wechselwirkung zwischen dem Monopol- und dem

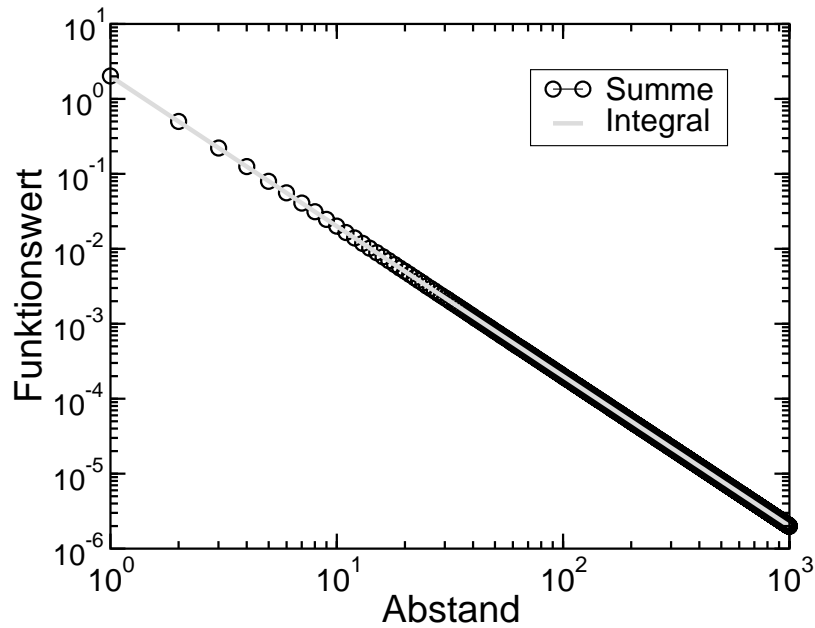


Abbildung 5.6: Vergleich zwischen Integralnäherung f_{dd}^{INT} und numerischer Summe f_{dd}^{SUM} gegen Abstand ξ der Stufen. Die Summe zeigt gute Übereinstimmung mit dem erwarteten asymptotischen Verhalten $\sim \xi^{-2}$.

Dipolmoment der Stufen.

$$\begin{aligned}
 W_{qh} &= -\frac{\alpha}{4} \sum_{i,j} 2(q_i - q_j)(h_i - h_j) \Psi(r_{ij}) \\
 &= -\frac{\alpha}{4} \tilde{h} \sum_{\substack{i \in S \\ j \notin S}} \frac{2(q_i - q_j)}{r_{ij}^3} + \frac{\alpha}{4} \tilde{h} \sum_{\substack{j \in S \\ i \notin S}} \frac{2(q_i - q_j)}{r_{ij}^3} \\
 &= -\alpha \tilde{h} \sum_{\substack{i \in S \\ j \notin S}} \frac{q_i}{r_{ij}^3} = -2\alpha \tilde{h} \tilde{q} \sum_{\substack{i \in L_1 \\ j \notin S}} \frac{1}{r_{ij}^3}
 \end{aligned}$$

Durch analoges Vorgehen erhält man

$$\begin{aligned}
 2\tilde{h}\tilde{q} \sum_{\substack{i \in L_1 \\ j \notin S}} \frac{1}{r_{ij}^3} &= 2\tilde{h}\tilde{q}L \left[\sum_{\substack{i=(x=0,y=0) \\ j=(x'<0,y')}} \frac{1}{r_{ij}^3} + \sum_{\substack{i=(x=0,y=0) \\ j=(x'\geq\xi,y')}} \frac{1}{r_{ij}^3} \right] \\
 &\sim 2\tilde{h}\tilde{q}L s_{a,h} + 2\tilde{h}\tilde{q}L \int_{\xi}^{\infty} dx' \int_{-\infty}^{\infty} dy' \frac{1}{(x'^2 + y'^2)^{3/2}} = 2\tilde{h}\tilde{q}L \left[s_{a,h} + \frac{2}{\xi} \right].
 \end{aligned}$$

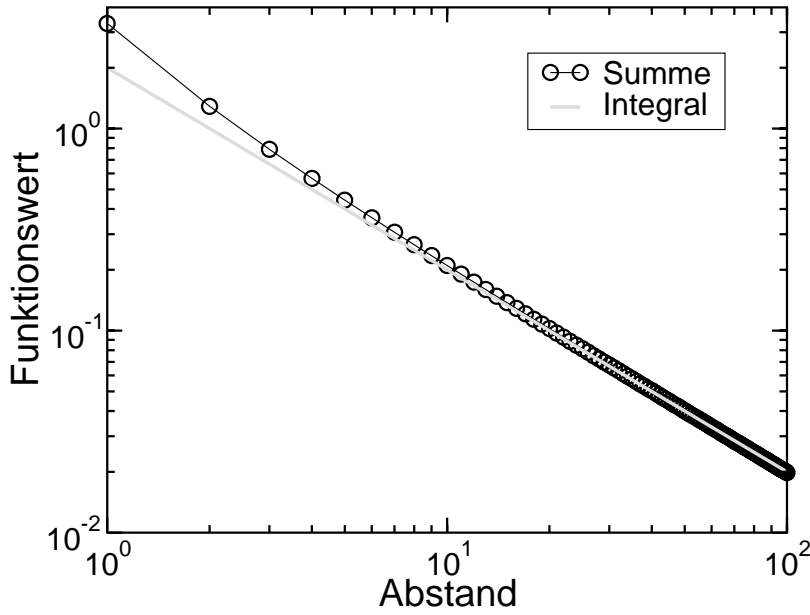


Abbildung 5.7: Vergleich zwischen Summe und Integralnäherung. f_{dm}^{SUM} und f_{dm}^{INT} sind gegen Abstand ξ der Stufen aufgetragen. Summe und Integral liefern ein asymptotisches Verhalten $\sim \xi^{-1}$.

Unter Berücksichtigung aller Vorzeichen ist diese Wechselwirkung für die betrachtete Geometrie anziehend. Unter Verwendung der Definition

$$f_{dm}^{INT} = \frac{2}{\xi}; \quad f_{dm}^{SUM} = \sum_{\substack{i = (x=0, y=0) \\ j = (x' \geq \xi, y')}} \frac{1}{r_{ij}^3}, \quad (5.54)$$

kann man die Beiträge zur elastischen Energie aufgrund der gemischten Terme mit $f_{dm}^0 = s_{a,h} \approx 3.3$ in der Form

$$W_{qh} \sim -\alpha \tilde{q} \tilde{h} 2L [f_{dm}(\xi) + f_{dm}^0] \quad (5.55)$$

schreiben. Abbildung 5.7 zeigt einen Vergleich zwischen der Integralnäherung und Summe. Wieder zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen f_{dm}^{INT} und f_{dm}^{SUM} .

Ergebnis

Kombiniert man die Teilergebnisse aus den Gleichungen (5.51), (5.53) und (5.55), so ergibt sich die elastische Energie der betrachteten Stufenkonfiguration zu

$$\begin{aligned} W[h, q] &= \alpha L \left[-\tilde{h}^2 f_{mm}(\xi) + \tilde{q}^2 [f_{dd}(\xi) + f_{dd}^0] - 2\tilde{q}\tilde{h} [f_{dm}(\xi) + f_{dm}^0] \right] \\ &\approx \alpha L \left[-\tilde{h}^2 [2 \ln(\xi) - 3.2] + \tilde{q}^2 [2\xi^{-2} + 3.4] - 2\tilde{q}\tilde{h} [2\xi^{-1} + 3.3] \right]. \end{aligned} \quad (5.56)$$

Die Stärke der Wechselwirkungen ist zunächst proportional zu α . Die relativen Amplituden der Wechselwirkungen zwischen Monopolen und Dipolen sowie zwischen Dipolen allein sind durch die Parameter \tilde{q} und \tilde{h} festgelegt.

5.6.4 Einzelnes Adatom vor einer Stufe

Betrachtet man nun ein Adatom im Abstand ξ vor einer Stufe, so sind die Dipolfelder durch

$$h_{i=(x,y)} = \begin{cases} \tilde{h} & x \geq 0 \\ \tilde{h}\delta_{x,-\xi}\delta_{y,0} & \text{sonst} \end{cases}, \quad (5.57)$$

$$q_{i=(x,y)} = \begin{cases} \tilde{q} & x = 0 \\ \tilde{q}\delta_{x,-\xi}\delta_{y,0} & \text{sonst} \end{cases} \quad (5.58)$$

gegeben. Mit der bedeckten Fläche A , die die von der Stufe bedeckte Halblage und das einzelne Adsorbatatom berücksichtigt, lässt sich die elastische Energie der Konfiguration als

$$W[h, q] = A w_h \tilde{h} - \frac{\alpha}{4} \sum_{i,j} [(h_i - h_j)^2 + 2(q_i - q_j)(h_i - h_j) - 2q_i q_j] \Psi(r_{ij}^3)$$

schreiben. Die Beiträge zu dieser Energie sind in vielerlei Hinsicht ähnlich zu der Konfiguration des Adsorbatstreifens mit den zwei begrenzenden Stufen. Wiederum ist es sinnvoll, die Nomenklatur durch Benennung von Summationsgebieten zu erleichtern. S bezeichne die gefüllte Halblage, P sei das einzelne Adsorbatatom und L die Linie entlang der Stufenoberkante ($L \subset S$).

h - h -Terme

Die h - h -Terme sind verantwortlich für die Wechselwirkung des Monopolmoments der Stufe mit dem Dipolmoment des isolierten Adsorbatatoms. Mit der Definition der Größe $s_{a,l}$ durch

$$s_{a,l} = \sum_{(x,y) \neq (0,0)} \frac{1}{(x^2 + y^2)^{3/2}} \approx 9.03, \quad (5.59)$$

lässt sich der h - h -Beitrag zur elastischen Energie als

$$\begin{aligned} W_{hh} &= -\frac{\alpha}{4} \sum_{i,j} (h_i - h_j)^2 \Psi(r_{ij}) = -\frac{\alpha}{2} \sum_{\substack{i \in S \\ j \notin S}} \frac{\tilde{h}^2}{r_{ij}^3} - \frac{\alpha}{2} \sum_{\substack{i \in P \\ j \notin P}} \frac{\tilde{h}^2}{r_{ij}^3} + \alpha \sum_{\substack{i \in S \\ j \in P}} \frac{\tilde{h}^2}{r_{ij}^3} \\ &\approx -\alpha \tilde{h}^2 \{L[\ln(L) - 1] + 2\} - \alpha \tilde{h}^2 \frac{s_{a,l}}{2} + \alpha \tilde{h}^2 f_{dm}(\xi) \end{aligned} \quad (5.60)$$

schreiben. Dabei wurde die erste Summe im Limes großer L in der Form

$$\begin{aligned} \sum_{\substack{i \in S \\ j \notin S}} \frac{\tilde{h}^2}{r_{ij}^3} &= L \int_{-\infty}^{-1} dx \int_0^{\infty} dx' \int_{-L/2}^{L/2} dy \frac{1}{[(x-x')^2 + y^2]^{3/2}} \\ &\sim 2L[\ln(L) - 1] + 4 + \mathcal{O}(L^{-1}) \end{aligned}$$

ausgewertet. Dieses Ergebnis zeigt, dass die Selbstenergie einer einzelnen Stufe logarithmisch mit der Stufenlänge L divergiert. Die anderen beiden Terme sind Beiträge zur Selbstenergie des isolierten Adsorbatatoms und zur Wechselwirkung zwischen Stufe und Atom.

q - q -Terme

Dieser Anteil ist für die Wechselwirkung zwischen dem Dipolmoment der Stufe und dem q -Anteils des Dipolmomentes des isolierten Atoms verantwortlich. Es ergibt sich

$$W_{qq} = \frac{\alpha}{4} \sum_{i,j} 2q_i q_j \Psi(r_{ij}) = \alpha \tilde{q}^2 \sum_{\substack{i \in P \\ j \in L}} \frac{1}{r_{ij}^3} = \alpha \tilde{q}^2 f_{dd}(\xi). \quad (5.61)$$

h - q -Terme

Aus den gemischten Termen folgt die Wechselwirkung des h -Anteils des Dipolmomentes des isolierten Adsorbatatoms mit dem Dipolmoment der Stufe q . Ebenso beschrieben wird die Wechselwirkung des q -Anteils des Dipolmomentes des isolierten Atoms mit dem Monopolmoment der Stufe. Für die gemischten Terme gilt:

$$\begin{aligned} W_{qh} &= -\frac{\alpha}{4} \sum_{i,j} 2(q_i - q_j)(h_i - h_j) \Psi(r_{ij}) = -\frac{\alpha}{2} \sum_{\substack{i \in S \\ j \notin S}} \frac{2(q_i - q_j)(h_i - h_j)}{r_{ij}^3} \\ &= -\alpha \sum_{\substack{i \in S \\ j \notin S}} \frac{\tilde{h}(q_i - q_j)}{r_{ij}^3} + \alpha \sum_{\substack{i \in S \\ j \in P}} \frac{\tilde{h}(q_i - q_j)}{r_{ij}^3} \\ &= -\alpha \sum_{\substack{i \in L \\ j \notin S}} \frac{\tilde{h}\tilde{q}}{r_{ij}^3} + \alpha \sum_{\substack{i \in L \\ j \in P}} \frac{\tilde{h}\tilde{q}}{r_{ij}^3} + \alpha \sum_{\substack{i \in S \setminus L \\ j \in P}} \frac{\tilde{h}\tilde{q}}{r_{ij}^3} \\ &= -\alpha \sum_{\substack{i \in L \\ j \notin S}} \frac{\tilde{h}\tilde{q}}{r_{ij}^3} + \alpha \sum_{\substack{i \in S \\ j \in P}} \frac{\tilde{h}\tilde{q}}{r_{ij}^3} \\ &= -\alpha L \tilde{h}\tilde{q} s_{a,h} + \alpha \tilde{h}\tilde{q} f_{dm}(\xi). \end{aligned} \quad (5.62)$$

Ergebnis

Fasst man die Teilergebnisse aus (5.60), (5.61) und (5.62) zusammen, so ergibt sich

$$\begin{aligned} W[h, q] = & Aw_h \tilde{h} + \alpha \left\{ \tilde{h}^2 [f_{dm}(\xi) - L(\ln L - 1) - 2 - s_{a,l}/2] \right. \\ & \left. + \tilde{q}^2 f_{dd}(\xi) + \tilde{h} \tilde{q} [f_{dm}(\xi) - Ls_{a,h}] \right\}. \end{aligned} \quad (5.63)$$

Die Stärke der Wechselwirkungen ist proportional zu α . Die relativen Amplituden der Wechselwirkungen zwischen dem Dipolmoment des Adatoms und dem Monopolmoment der Stufe sowie zwischen dem Dipolmoment des Adatoms und dem Dipolmoment der Stufe ergeben sich aus den Parametern \tilde{q} und \tilde{h} . Auch hier liefert das Modell alle generischen Wechselwirkungen zwischen den Momenten der Kraftdichte.

5.7 Multigrid-Algorithmus

Eine schnelle Bestimmung der Energien stellt das Hauptproblem der Effizienz einer Monte-Carlo-Simulation mit langreichweitig wechselwirkenden Teilchen dar. Ist bei Einteilchendiffusion die Energie noch relativ einfach zu berechnen, da das Potential für einen längeren Zeitraum als konstant gegeben ist und somit – wenn überhaupt – nur selten bestimmt werden muss, so resultiert aus der Teilchenwechselwirkung bei Vielteilchendiffusion ein schnell veränderliches Potential, das sich mit jedem Mikrozeitschritt verändert. Im Fall der $1/r^3$ Wechselwirkung zwischen Adsorbatatomen, siehe Kapitel 4, hat man es bei einem Substrat der Größe L^2 mit beliebiger endlicher Adsorbatdichte $n < 1$ mit einer Vielzahl $N = nL^2$ von wechselwirkenden Teilchen zu tun. Die Energie eines Adsorbatatoms ergibt dann sich aus der Superposition der Zweiteilchen-Potentiale. Will man auf eine künstlich eingeführte endliche Reichweite verzichten, so ergibt sich die Notwendigkeit der Summation über $\mathcal{O}(L^2)$ Terme. Für den betrachteten Fall der Simulation eines Diffusionsprozesses mit lokalen Monte-Carlo-Schritten bedeutet das pro Zeitschritt einen Aufwand von $\mathcal{O}(L^4)$, da jedem Adsorbatatom pro Zeitschritt die Möglichkeit gegeben werden soll, einen Übergang zu machen. Im Gegensatz zur Diffusion eines einzigen Teilchens in einem äußeren Feld ändert sich durch den Übergang eines Adsorbatatoms das Potential für jedes andere Adsorbatatom. Das Feld ist kein äußeres, welches für eine bestimmte Anzahl Zeitschritte unverändert bleibt, sondern es ändert sich durch jeden akzeptierten Monte-Carlo-Schritt. Im Gegensatz zum Fall ohne Wechselwirkung quadriert sich der Aufwand.

Ohne eine Reduktion der Ordnung des Aufwands ist die Simulation eines wechselwirkenden Systems kaum sinnvoll, da die Vergleichbarkeit zu typischerweise viel größeren Systemen ohne langreichweitige Wechselwirkung nicht gewährleistet ist. Die Einführung einer endlichen Reichweite des Potential würde zwar die Ordnung reduzieren, jedoch eine neue Längenskala ins Spiel bringen, was insbesondere im Hinblick auf das zu untersuchende Skalenverhalten äußerst problematisch erscheint.

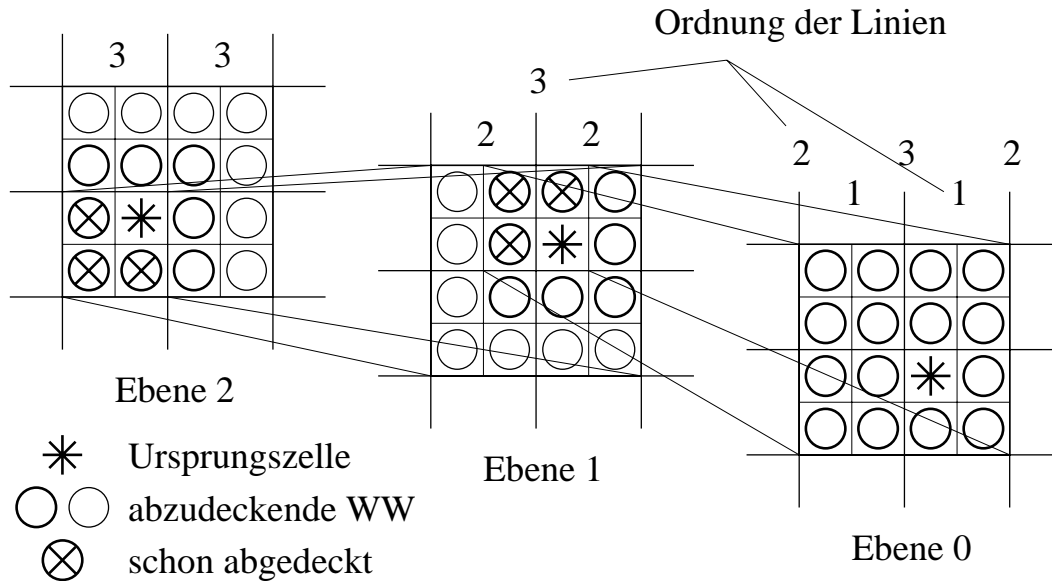


Abbildung 5.8: Skizze zum Multigridverfahren: Zuordnung der zu berücksichtigenden und der schon abgedeckten Positionen.

Ein Ausweg aus dem Dilemma ergibt sich durch den Einsatz eines Multigrid-Verfahrens. Man betrachtet dabei das System auf einer Zahl unterschiedlicher hierarchischer Vergrößerungsskalen und berechnet die Wechselwirkung auf jeder Vergrößerungsstufe nur in unmittelbarer Näherung der Zelle, zu welcher der ursprüngliche Gitterpunkt gehört. In der nullten Vergrößerungsstufe, im Folgenden auch Ebene genannt, entspricht das Gitter der Auflösung des Systems. Bei jedem Vergrößerungsschritt wird eine feste Anzahl von Gitterpunkten zusammengefasst.

Neben dem hier berücksichtigten Monopolmoment, welches der effektiven Verzerungsladung innerhalb der Zellen entspricht, kann in aufwendigeren Verfahren durch eine Einbeziehung höherer Terme der Multipolentwicklung natürlich die Genauigkeit gesteigert werden. Das hier benutzte Verfahren behandelt jedoch sowohl die kurzreichweitige Wechselwirkung als auch die langreichweitige Asymptotik exakt. Sollte die Vernachlässigung von Korrekturen für den Bereich mittlerer Entfernungen die universellen Systemeigenschaften beeinflussen, so sind diese Änderungen mit der uns derzeit zur Verfügung stehenden Rechenzeit nicht aufzudecken. Es folgt eine detaillierte Beschreibung des verwendeten Algorithmus.

5.7.1 Algorithmus der Energieberechnung

In der vorliegenden Version des Algorithmus wurde eine Zweierblockung gewählt. Diese bietet im Vergleich zur Dreier- oder Fünferblockung Geschwindigkeitsvorteile aufgrund der einfacheren Darstellung der Integer-Division durch Bitshift-Operationen

in der binären Arithmetik des Computers. Nun sind zum einen die Monopolmomente auf allen Vergrößerungsebenen durch Summation zu bestimmen, zum anderen muss eine einfache Zuordnung gefunden werden, welche Monopolmomente auf der jeweiligen Ebene zu berücksichtigen sind und welche auf niedrigeren Ebenen schon berücksichtigt wurden. Dazu sollte eine Hierarchie von Gittern unabhängig vom Gitterplatz ausreichen. Die Regel ist recht einfach: Es sind immer gerade die nächsten und übernächsten Nachbarplätze sowie zusätzlich der Rest, der von Linien höherer Ordnung eingegrenzten Vierergruppen, abzudecken. Das Verfahren ist in Abbildung 5.8 skizziert. Der Stern bezeichnet hier den Punkt im Ursprungsgitter, in dem das Potential berechnet werden soll. Auf höheren Ebenen kennzeichnet er die vergrößerte Koordinate, die dieser Punkt bei der jeweiligen Vergrößerung hat. Auf unterster Ebene gibt es dabei noch keine Komplikationen, da die mit einem Kreis gekennzeichneten Ladungen ohne Näherung uneingeschränkt in die Energieberechnung eingehen. Ab der ersten Ebene tritt jedoch der Fall auf, dass genau drei der neuen nächsten Nachbarn schon auf niedrigerer Ebene berücksichtigt wurden. Um eine Doppelzählung der Ladungen zu verhindern, fallen sie für diese Ebene aus der Summation heraus. Die restlichen auf einer Ebene dann zu berücksichtigenden Ladungen sind in zwei Winkeln angeordnet, die in Abbildung 5.8 durch unterschiedliche Linienbreite betont wurden, einem großen äußeren und einem kleinen inneren, deren Lage und Orientierung sich durch Modulo-Operationen bestimmen lassen.

Hat das System die Seitenlänge L , so muss die Berechnung über $\log_2 L$ Ebenen erfolgen. Sind alle Monopole bekannt, so ist der Aufwand für alle Ebenen gleich und der Aufwand für die Energieberechnung wächst mit $\log L$ der Systemgröße. Es bleibt noch zu erwähnen, dass das Auffrischen der Ladungen bei Konfigurationsänderungen sich ebenfalls mit einem Aufwand proportional $\log L$ bewerkstelligen lässt. Insgesamt verringert dieser Multigrid-Algorithmus also den Aufwand im Vergleich zur einfachen Summation über Zweiteilchenpotentiale von L^2 auf $\log L$.

5.7.2 Behandlung der Monopolwechselwirkung

Mit der Wechselwirkung zweier Teilchen auf dem Ursprungsgitter ist auch die Wechselwirkung der Monopole auf den Vergrößerungsebenen gegeben. Die Verallgemeinerung des Teilchenpotentials auf die Wechselwirkung eines Monopols mit einem bestimmten Teilchen beruht auf der Mittelung über die Teilchenwechselwirkung aller zu diesem Monopol gehörigen Mikrokonfigurationen. Das entspricht dem Prinzip maximaler Entropie oder der Annahme, die Ladung des Monopols sei homogen innerhalb der Makrozelle verteilt.

Um Speicherplatz zu sparen, werden wir ferner nicht nur eine homogene Verteilung in der Zelle, mit der das betrachtete Teilchen wechselwirkt, sondern auch eine homogene Verteilung in der Zelle des betrachteten Teilchens selbst annehmen. Da das Potential der nullten Ebene ohne Modifikation auf dem Gitter gegeben ist, lässt sich im Prinzip das Potential auf höheren Ebenen durch direkte Summation bestimmen. Es treten dann aber Korrekturen für die nächsten Nachbarn und diagonal-nächsten Nachbarn

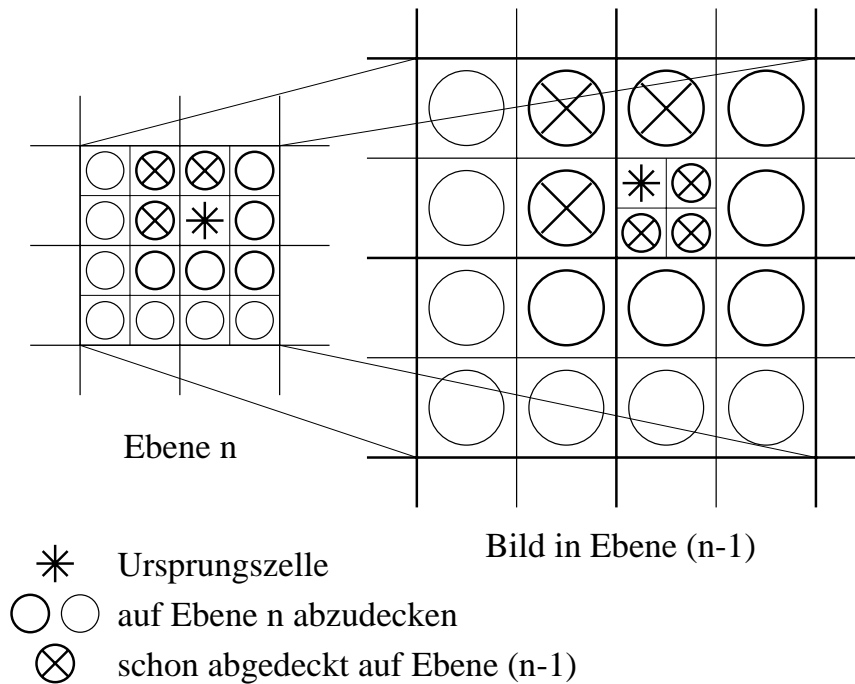


Abbildung 5.9: Korrekturen zum Potential durch Topologie der nächsten Nachbarn.

auf, welche sich aus der Struktur des Algorithmus ergeben. Am einfachsten zu sehen ist es im Fall der nächsten Nachbarn auf Ebene n . Wird im Algorithmus eine direkt benachbarte Zelle auf Ebene n berücksichtigt, so bedeutet dies, dass die Zelle des betrachteten Teilchens auf Ebene $n-1$ nicht direkt an den Viererblock grenzt haben kann, der die obige direkt benachbarte Zelle auf Ebene $n-1$ vertritt. Abbildung 5.9 zeigt die Topologie der nächsten Nachbarplätze auf Ebene n und deren Lage zur betrachteten Position auf Ebene $n-1$. Hier muss das Potential folglich korrigiert werden. Der Fall der diagonal-nächsten Nachbarn verhält sich analog.

In dieser Version kommt der Algorithmus mit einer 3×3 -Matrix pro Ebene aus. Nimmt man jedoch die Position des betrachteten Teilchens exakt mit, so benötigt man auf Ebene n eine Potentialmatrix der Größe $3 \cdot 2^n \times 3 \cdot 2^n$, was den Speicherbedarf enorm erhöht. Bei einer typischen Systemgröße von 1024×1024 ergäbe sich im letzteren Fall bei der Verwendung von Gleitkommazahlen doppelter Genauigkeit ein Speicherbedarf von 72MByte allein für die Potentialmatrix. Natürlich wäre es wünschenswert, hier die Position exakt mitzunehmen, genauso wie es wünschenswert wäre, den Algorithmus auf höhere Terme der Multipolentwicklung auszuweiten. Diese Verbesserungen sind aber nur auf Kosten der Systemgröße zu realisieren und treten deshalb in den Hintergrund.

Es wäre ohne weiteres denkbar, die bislang feste Multigrid-Überstruktur im Mittel zu beseitigen, indem man das Grid beispielsweise alle N^2 Schritte um einen zufälligen Vektor verschiebt, siehe Abbildung 5.10. Effekte, die durch eine feste Multigrid-Über-

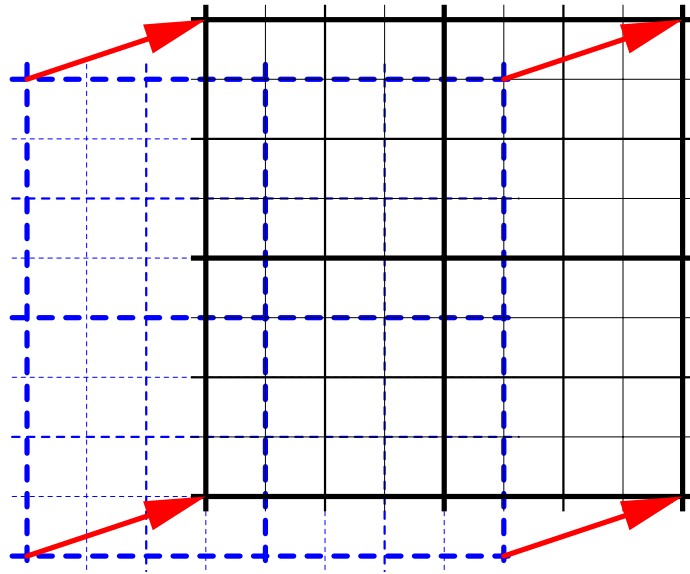


Abbildung 5.10: Die Skizze zeigt eine mögliche zufällige Verschiebung des Multigrids, welche dazu dienen könnte, jene Effekte zu vermeiden, die durch eine feste Multigrid-Überstruktur auftreten könnten. Das System wird innerhalb der Periodizität um einen zufällig gewählten Vektor verschoben. Die Liniendicke symbolisiert die Struktur der Makrozellen auf höheren Ebenen der Multigrid-Struktur.

struktur auftreten könnten, würden hierdurch vermieden. Da jedoch im Verlauf der Arbeit keine Auffälligkeiten dieser Art auftraten, wurde auf den Einsatz dieser Technik verzichtet.

5.8 Numerische Tests

Die folgenden Tests wurden mit dem oben beschriebenen Multigrid-Verfahren auf einem 1024×1024 -Gitter berechnet. Die Zuordnung der Ladungen an Stufenkanten entspricht Gleichung (5.45). Aufgrund der Konzeption des Multigridverfahrens, bei dem das Grid festgehalten wird, sind einige Invarianzen nicht exakt erfüllt. Die Energie einer Konfiguration ändert sich zum Beispiel geringfügig, wenn sie auf dem Gitter um ein paar Einheiten verschoben wird. Um diese Effekte sichtbar zu machen, werden im Folgenden die Testkonfigurationen über das Gitter verschoben und Maximal-, Minimal- und Durchschnittsenergien bestimmt. Wechselwirkungsenergien zwischen verschiedenen Objekten sind auf die Energie für große Abstände bezogen, bei denen die Wechselwirkung vernachlässigt werden kann. Oberflächenenergien werden nicht berücksichtigt, die elastische Wechselwirkung wurde für die folgenden Simulationen nicht um eine Bindungsenergie ergänzt.

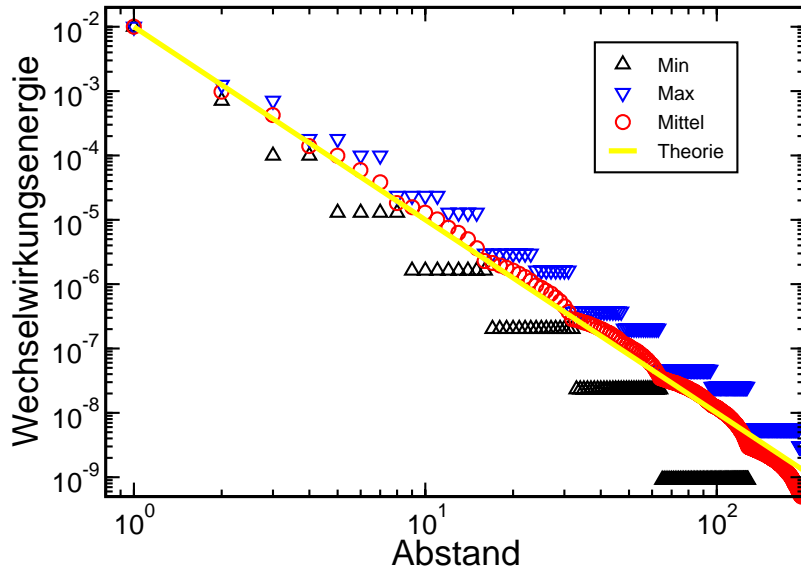


Abbildung 5.11: Wechselwirkungsenergie $W(r)$ zweier einzelner Adsorbatatome gegen den Abstand r . Mit $\tilde{q} = 0$, $\tilde{h} = 0.1$ und $\alpha = 1$ reproduziert das Multigrid-Verfahren im Mittel das theoretisch erwartete Verhalten $W \sim 0.01r^{-3}$.

5.8.1 h -Feld

Dies ist der Fall mit heteroepitaktischer Gitterfehlانpassung unter Vernachlässigung von zusätzlich an den Stufen auftretenden elastischen Dipolen. Abbildung 5.11 zeigt hierzu die Energie zweier Adsorbatatome im Abstand r . Mit $\tilde{q} = 0$ und $\tilde{h} = 0.1$ trägt das q -Feld nicht zur Energie bei.

Für zwei einzelne Adsorbatatome erwarten wir für die Wechselwirkungsenergie $W(r)$ eine Abstandsabhängigkeit der Art r^{-3} . Für die spezielle Wahl des Parameters $\alpha = 1$ sollte sich die Energie W wie $\sim 0.01r^{-3}$ verhalten. Wie man leicht sieht, liefert der Multigrid-Algorithmus im Mittel das erwartete Verhalten. Abweichungen für große Abstände haben ihren Ursprung in den periodischen Randbedingungen und der endlichen Systemgröße.

Die Wechselwirkungsenergie W eines einzelnen Adsorbatatoms mit einer Linie von Adsorbatatomen im Abstand r kann durch Integration der r^{-3} ermittelt werden und verhält sich wie $2r^{-2}$. Mit den oben gewählten Parametern ergibt sich eine Wechselwirkungsenergie $W \sim 0.02r^{-2}$. Das Ergebnis des Multigrid-Verfahrens ist in Abbildung 5.12 gezeigt. Die Übereinstimmung ist zufriedenstellend.

Durch weitere Integration kann man die Wechselwirkung W des Adatoms mit einer Stufe ermitteln. Unter Beibehaltung der obigen Wahl von Parametern ergibt sich für diese Konfiguration $W \sim 0.02r^{-1}$. Das Multigridverfahren liefert die in Abbildung 5.13 gezeigten Daten. Die Übereinstimmung ist zufriedenstellend, wenn man bedenkt, dass das theoretische Ergebnis durch Integration und nicht durch Summation ermittelt wurde. Ein Vergleich zwischen der relevanten Summe im Vergleich zum

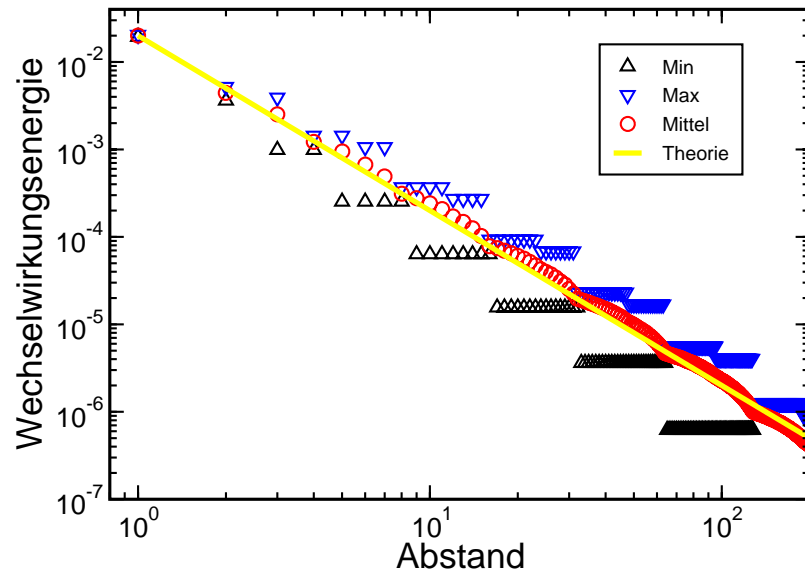


Abbildung 5.12: Wechselwirkungsenergie $W(r)$ eines Adsorbatatoms mit einer geraden Linie von Adsorbatatomen gegen den Abstand r . Mit $\tilde{q} = 0$, $\tilde{h} = 0.1$ und $\alpha = 1$ reproduziert der Multigrid-Algorithmus im Mittel die Vorhersage der Theorie $W \sim 0.02r^{-2}$.

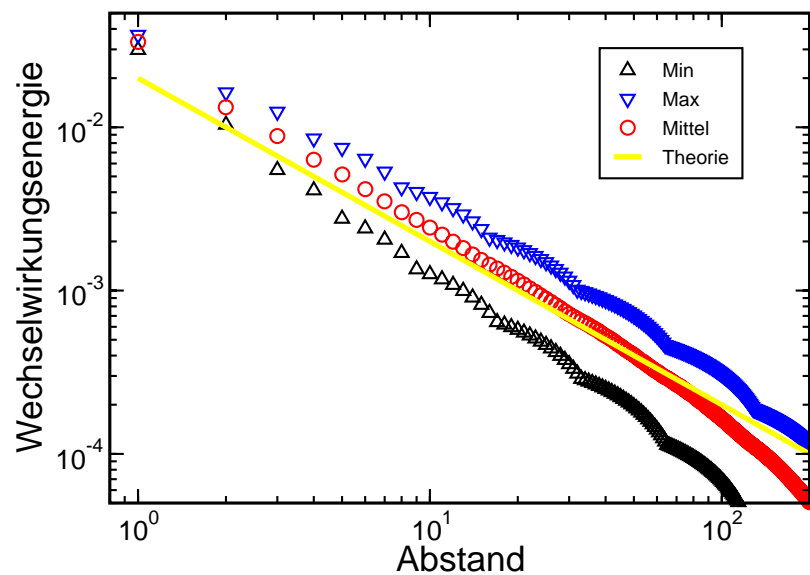


Abbildung 5.13: Wechselwirkungsenergie $W(r)$ eines Adsorbatatoms mit einer gefüllten Halblage von Adsorbatatomen, d. h. einer Stufe, gegen den Abstand r . Mit $\tilde{q} = 0$, $\tilde{h} = 0.1$ und $\alpha = 1$ liefert der Multigrid-Algorithmus in etwa das erwartete Verhalten $W \sim 0.02r^{-1}$.

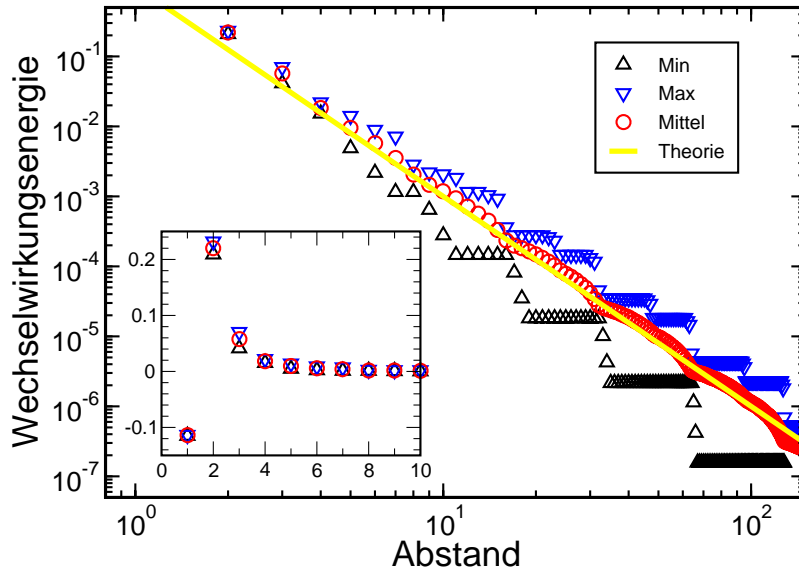


Abbildung 5.14: Energie $W(r)$ zweier einzelner Adsorbatatome im Abstand r entlang der Hauptachsenrichtung aufgrund des Dipolfeldes q , d. h. aufgrund der sie umgebenden Kantendipole. Mit $\tilde{q} = 0.125$, $\tilde{h} = 0$ und $\alpha = 1$ reproduziert der Multigridalgorithmus im Mittel das erwartete $W \sim r^{-3}$ Verhalten. Der Detailgraph zeigt die Abweichungen für kleine Abstände. Im Abstand $r = 1$ ist die Kantenlänge vermindert, da die Atome aneinandergrenzen.

Integral ist in Abbildung 5.7 zu sehen.

Im Vergleich der letzten drei Konfigurationen sieht man, dass das Ergebnis um so sensitiver auf die Systemgröße reagiert, je schwächer die Wechselwirkung für große Abstände abfällt. Gleichzeitig werden die Abweichungen von der Integralnäherung für kleine Abstände immer größer.

5.8.2 q -Feld

Komplementär zum letzten Abschnitt beziehen sich die folgenden Ergebnisse auf den Fall verschwindender Gitterfehlانpassung. Die Stufenkanten-Dipole allein entfalten ihre Wirkung. Dieser Fall korrespondiert mit einer Wahl der Parameter $\tilde{q} = 0.125$ und $\tilde{h} = 0$.

Betrachten wir zunächst wieder den Fall der zwei einzelnen Adsorbatatome. Die Erwartung für große Abstände bleibt unverändert im Vergleich zu dem Fall des reinen h -Feldes. Abgesehen vom Fall $r = 1$, in dem sich die Gesamtzahl der Dipolladungen ändert, weil das Atom die Linie berührt, weicht das Ergebnis genau dann ab, wenn die etwas breitere Verteilung der Ladungen auf beiden Seiten der Stufenkanten eine Rolle spielt, siehe Abbildung 5.11. Die negative Wechselwirkungsenergie im Abstand $r = 1$ hat ihren Ursprung in der elastischen Selbstenergie der Linienelemente.

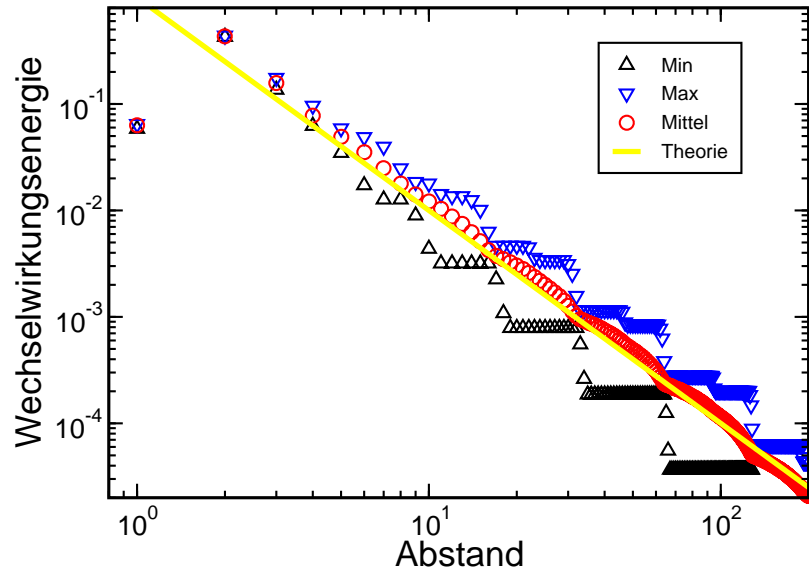


Abbildung 5.15: Wechselwirkungsenergie $W(r)$ eines einzelnen Adsorbatatoms mit einer Linie von Adsorbatatomen im Abstand r aufgrund der Kanten-Dipole. Mit $\tilde{q} = 0.125$, $\tilde{h} = 0$ und $\alpha = 1$ reproduziert der Multigridalgorithmus im Mittel das erwartete $W \sim r^{-2}$ Verhalten.

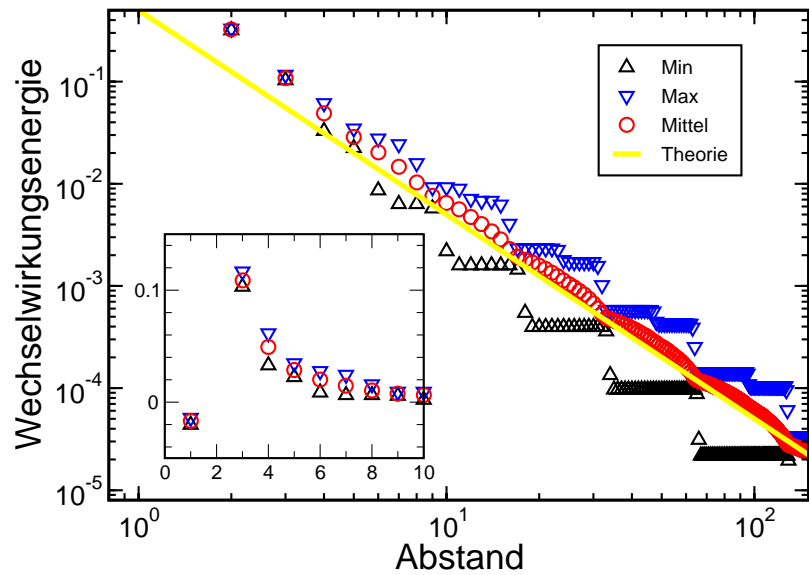


Abbildung 5.16: Wechselwirkungsenergie $W(r)$ eines Adsorbatatoms mit einer Stufe, d. h. einer halbusendlichen Adsorbatschicht, im Abstand r aufgrund von Stufenkanten-Dipolen. Mit $\tilde{q} = 0.125$, $\tilde{h} = 0$ und $\alpha = 1$ zeigen die Daten gute Übereinstimmung mit dem erwarteten theoretischen Verhalten $W \sim 0.5r^{-2}$. Der Detailgraph zeigt die Abweichungen für kleine Abstände und den Verlust der Kantenlänge, wenn das Atom die Linie berührt.

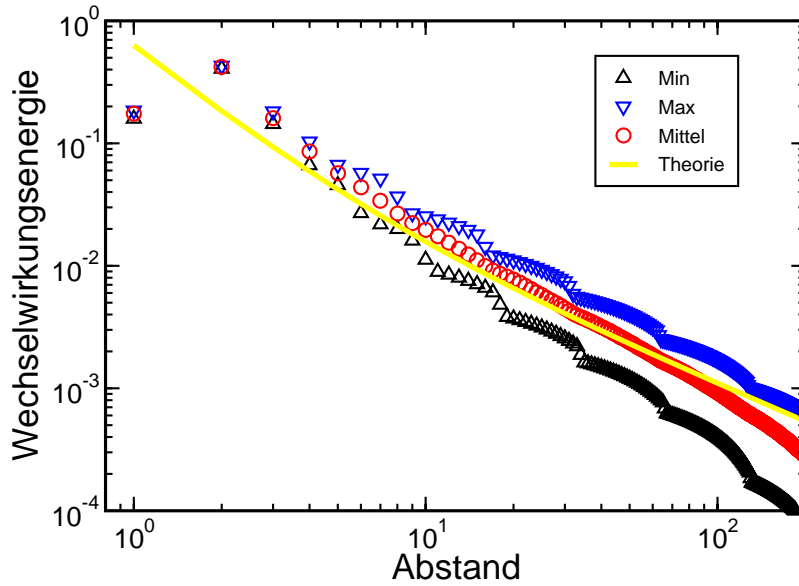


Abbildung 5.17: Wechselwirkungsenergie $W(r)$ eines Atoms mit einer Stufe, d. h. einer halbunendlichen Adsorbatschicht, aufgetragen gegen den Abstand r für $\tilde{q} = 0.125$, $\tilde{h} = 0.05$ und $\alpha = 1$. Der Multigrid-Algorithmus reproduziert im Mittel das erwartete Verhalten $W \sim 0.525r^{-2} + 0.105|r|^{-1}$. Der Abstand $r > 0$ bedeutet, dass das Atom vor der Stufe liegt.

Das Ergebnis für die Wechselwirkung des Atoms mit einer Linie, siehe Abbildung 5.15, ist nicht sehr verschieden vom korrespondierenden h -Fall, das Potenzgesetz ist dasselbe. Der Berühreffekt erscheint wenig ausgeprägt im Vergleich zur Abstossung durch die gesamte Doppelreihe von Dipolen.

Die Gesamtladung der Stufe ist nur halb so groß wie die der Linie von Atomen. Deshalb halbiert sich der Vorfaktor des asymptotischen Potenzgesetzes, siehe Abbildung 5.16. Der Berühreffekt ist größer, da die Stufe nur eine Seite hat.

5.8.3 Kombination von q -Feld und h -Feld

Obwohl die Wechselwirkungsenergien nicht linear in den Ladungsfeldern sind sondern quadratisch, ist in den Atom-Atom- und Atom-Linie-Konfigurationen kaum Neues zu entdecken. Die Wechselwirkungsenergie ist im Wesentlichen eine Superposition der schon bekannten Fälle. Wir gehen deshalb direkt zum Fall der Adatom-Stufen-Wechselwirkung über.

Die Wechselwirkung zerfällt in zwei asymptotische Teile, die sich wie $2r^{-2}$ und $2r^{-1}$ verhalten, und welche als Wechselwirkung der Dipol-Momente des einzelnen Atoms mit den Dipolmomenten der Stufe sowie mit dem Monopol-Moment der Stufe verstanden werden können. Die Koeffizienten können unter Beachtung der korrespondierenden Ladungsdichten ermittelt werden. Für die Wahl $\tilde{q} = 0.125$, $\tilde{h} = 0.05$ und

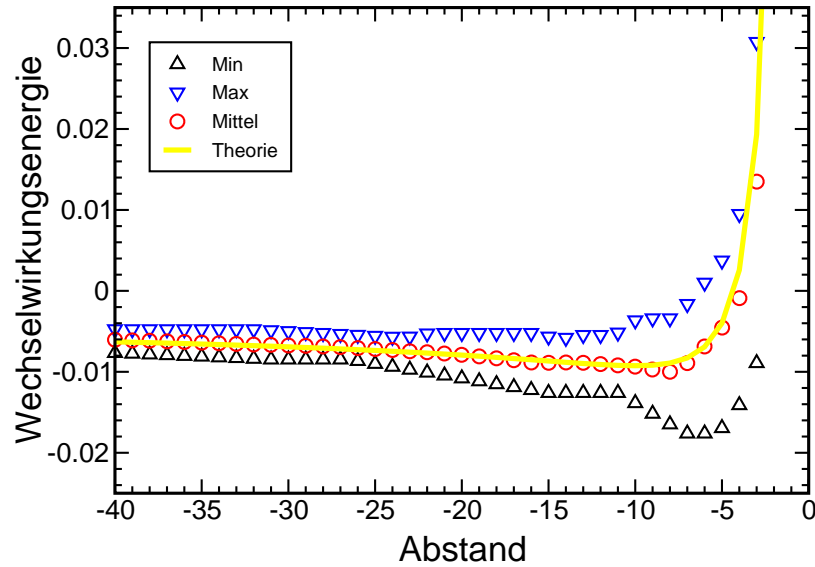


Abbildung 5.18: Wechselwirkungsenergie $W(r)$ eines Atoms mit einer Stufe, d. h. einer halbumendlichen Adsorbatschicht, aufgetragen gegen den Abstand r für $\tilde{q} = 0.125$, $\tilde{h} = 0.05$ und $\alpha = 1$. Der Multigrid-Algorithmus reproduziert im Mittel das erwartete Verhalten $W \sim 0.525r^{-2} - 0.105|r|^{-1} - 0.0033$. Der negative Abstand bedeutet eine Position des Adsorbatatoms hinter der Stufe, d. h. es befindet sich oben auf dem halbumendlichen Adsorbatfilm.

$\alpha = 1$ erwarten wir ein Verhalten $W \sim 1.05 \cdot 0.25 \cdot 2r^{-2} \pm 1.05 \cdot 0.05 \cdot 2r^{-1}$, wobei das Minuszeichen für den Fall gilt, dass sich das Atom auf der Halblage befindet. Abbildung 5.17 und Abbildung 5.18 zeigen die Ergebnisse des Multigrid-Verfahrens für die beiden Fälle. Letzterer ist interessanter, weil die Wechselwirkungsenergie ein Minimum annimmt, und zwar in einem Abstand von $r \approx 5 \sim 15$.

Es ist offensichtlich, dass die Wechselwirkungsenergie für große Abstände nicht gegen Null konvergiert. Dies ist ein Effekt endlicher Systemgröße. Tatsächlich musste die Stufe als breiter Adsorbat-Streifen realisiert werden. Bezieht man in dieser Konfiguration die Wechselwirkung mit der zweiten Stufenkante in die Berechnungen ein, so erwartet man einen Grenzwert von -0.0033 , was recht gut mit dem numerischen Ergebnis übereinstimmt.

Man kann sehen, dass der Mittelwert recht gut mit der Theorie übereinstimmt, jedoch unterscheiden sich Minimum und Maximum stark. Für die Maximalkurve ist damit das Minimum nur schwach ausgeprägt.

5.9 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde ein Modell entwickelt, welches die wesentlichen elastischen Wechselwirkungen homoepitaktischer und heteroepitaktischer Schichten auf einer un-

endlich ausgedehnten Kristalloberfläche beschreibt. Durch die volumenbasierte Darstellung der Energie ist das Modell für Monte-Carlo-Simulationen mit lokalen Konfigurationsänderungen, wie sie beispielsweise durch Oberflächendiffusion oder Adsorptions- und Desorptionsprozesse induziert werden, bestens geeignet.

Nachdem das Modell zunächst in einer Kontinuumsbeschreibung definiert wurde, zeigen die Ergebnisse aus Kapitel 5.6, dass auch das auf einem Quadratgitter diskretisierte Modell die erwarteten Wechselwirkungen erzeugt.

Die Darstellung des Multigrid-Verfahrens in Kapitel 5.7 zeigt, auf welcher Basis eine näherungsweise Berechnung der Energien erfolgen kann. Es wird hierbei sorgfältig vermieden, die Reichweite von Wechselwirkungen zu beschränken, da die analytische Form der Stufenwechselwirkung durch langreichweitige Anteile dominiert wird. Die Auswirkungen der Behandlung durch das Multigrid-Verfahren sind in Kapitel 5.8 dargestellt. Es zeigt sich, dass durch die Wahl einer festen Multigrid-Überstruktur die berechneten Wechselwirkungsenergien von der Position der Konfiguration auf dem Gitter abhängig sind. Jedoch sind die Fehler für kurze Abstände zu vernachlässigen, da der Einfluss nächster Nachbarn exakt mitgenommen wird. Auch die Asymptotik der Wechselwirkungen wird gut wiedergegeben.

Es steht damit ein adäquates Modell zur effizienten Simulation von Oberflächen und epitaktischen Schichten mit elastischen Effekten zur Verfügung.

Kapitel 6

Theorie des Aufrauungsübergangs

In diesem Kapitel wird eine kurze Einführung in die klassische Theorie des Aufrauungsübergangs gegeben. Die hier vorgestellten Zusammenhänge sind die Grundlage zum Verständnis des Kapitels 7 zum Aufrauungsübergang mit langreichweitiger elastischer Wechselwirkung.

6.1 Motivation

Es ist bekannt, dass eine Kristalloberfläche bei niedrigen Temperaturen aufgrund der Anisotropie der Oberflächenenergie die Form einer glatten Facette annimmt. Die Gleichgewichtsform ergibt sich hierbei aus der Minimierung der Energie E der Oberfläche unter den vom System vorgegebenen Nebenbedingungen. Mit steigender Temperatur T werden jedoch Fluktuationen immer wichtiger. Das entscheidende thermodynamische Potential ist die freie Energie $F = E - TS$, deren Entropiebeitrag S nur im Grenzfall tiefer Temperaturen zu vernachlässigen ist. Während die Energie allein eine glatte Facette favorisiert, ist dieser Zustand aus entropischer Sicht sehr ungünstig ($S = 0$). Nimmt man an, dass sich ein Atom aus dieser glatten Schicht löst und stattdessen irgendwo auf der Oberfläche anlagert, erfährt das System einen Entropiegewinn, der mit steigender Temperatur ein immer größeres Gewicht bekommt. Die Beschaffenheit der Oberfläche wird durch das Wechselspiel zwischen Energie- und Entropiebeitrag bestimmt.

Ein einfaches Argument, das für einen Übergang zu einer rauen Oberfläche spricht, findet man im Verhalten der freien Energie einer einzelnen Stufe. Eine Stufe bedeutet zunächst eine größere Oberfläche für das System. Sie kostet das System eine zusätzliche Oberflächenenergie, welche proportional zur Länge L und zur Höhe der Stufe ist. Betrachtet man zunächst nur Stufen mit fester Höhe (eine Gitterkonstante), so lässt sich die Energie als $E = Lw$ mit einer nackten Linienenergie w pro Gittereinheit schreiben. Verschiebt sich die Lage der Stufe an einer Stelle um eine Gittereinheit, so spricht man von einem Kink. Die Kinks in der Stufe kosten das System zwar zusätzliche Energie, im einfachen Fall isotroper Linienenergie ebenfalls w , erhöhen

aber zugleich die Entropie. Die Entropie ist wegen ihrer Extensivität ebenfalls proportional zur Länge der Stufe L und hängt von der Dichte der Kinks n ab. Sie lässt sich für dieses Modellsystem in der Form

$$S = Lk_B[n \ln(n/2) + (1 - n) \ln(1 - n)] \quad (6.1)$$

schreiben. Dabei ist schon berücksichtigt, dass die beiden möglichen Orientierungen gleich häufig vertreten sind. Etwas allgemeiner ist diese Betrachtung nochmals in Kapitel 7.4 ausgeführt. Die freie Energie ist dann durch

$$F = L[w + nw - k_B T(n \ln(n/2) + (1 - n) \ln(1 - n))] \quad (6.2)$$

gegeben. Die Konzentration der Kinks im Gleichgewicht ist durch die Bedingung $\partial F/\partial n = 0$ mit

$$n = \frac{2 \exp(-w/k_B T)}{1 + 2 \exp(-w/k_B T)} \quad (6.3)$$

festgelegt. Die Konzentration nimmt mit steigender Temperatur zu und verhält sich für tiefe Temperaturen wie $n \sim 2 \exp(-w/k_B T)$. Hieraus ergibt sich, dass die freie Energie F einer Stufe der Länge L

$$F(T) = Lw \left\{ 1 - \frac{k_B T}{w} \ln[1 + 2 \exp(-w/k_B T)] \right\} \quad (6.4)$$

für hohe Temperaturen negativ wird. Bei der Aufrauungstemperatur $k_B T_R/w = 1/\ln 2 \approx 1.44$ kostet das Ausbilden einer Stufe das System keine freie Energie mehr. Die Oberfläche raut makroskopisch auf. Die Wirklichkeit ist natürlich komplizierter. Das Stufenmodell ist zu grob um die Natur des Phasenübergangs richtig zu beschreiben. Dennoch liefert es ein wertvolles Argument für die Existenz des Übergangs [60, 61] und eine erste Abschätzung für die Aufrauungstemperatur.

In einer eher makroskopischen Beschreibung erzeugen die Fluktuationen mit steigender Temperatur allmählich eine nicht verschwindende Grenzflächendicke und die Facette weicht immer mehr auf. Diese Grenzflächendicke divergiert schließlich bei einer endlichen Temperatur, der Aufrauungstemperatur der Oberfläche, bei der die Orientierung der Facette vollständig verloren geht.

Dieser Übergang kann durch Renormierungsgruppengleichungen beschrieben werden, die zuerst von J. M. Kosterlitz und D. J. Thouless [62] analysiert wurden. Aufgrund der ungewöhnlichen Eigenschaften und des Zusammenhangs mit dem zweidimensionalen Coulomb-Gas [63], hat der thermische Aufrauungsübergang große Aufmerksamkeit erregt [64–74]. Eine ganze Reihe von Modellen in zwei Dimensionen zeigen dasselbe kritische Verhalten [71].

Der Aufrauungsübergang ist von erheblicher Bedeutung für die möglichen Wachstumsmechanismen. Damit der Kristall wachsen kann, muss unterhalb des Aufrauungsübergangs in Abwesenheit von Schraubenversetzungen ein kritischer Keim auf der glatten Oberfläche entstehen. Oberhalb des Aufrauungsübergangs ist das Wachstum nach dem so genannten Wilson-Frenkel-Gesetz in erster Näherung linear zur treibenden Kraft [75]. Hierdurch wird das Wachstum auch für infinitesimale treibende Kräfte, d. h. nahe dem Gleichgewicht, ermöglicht.

6.2 Diskretes Gaußsches Modell

Ein typisches Modell für den Aufrauungsübergang einer Kristalloberfläche, welches man mit Monte-Carlo-Methoden behandeln kann, ist das so genannte *Discrete Gaussian Solid-On-Solid* Modell (DGSOS), dessen Hamiltonian durch

$$H = \frac{J}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} (h_i - h_j)^2 \quad (6.5)$$

gegeben ist [76]. Hierbei handelt es sich um ein *Solid-On-Solid* (SOS) Modell, bei dem die Kristalloberfläche durch ein über der Grundfläche eindeutiges Höhenfeld h beschrieben wird – es gibt somit keine Überhänge. Das Höhenfeld h nimmt nur diskrete Vielfache der Gitterkonstanten an. Die Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarplätzen $\langle i, j \rangle$ mit der Kopplungskonstanten J entspricht einem $(\nabla h)^2$ -Term in der Entwicklung der Oberflächenenergie in einer feldtheoretischen Beschreibung. Die Nomenklatur ist hier so gewählt, dass $\langle i, j \rangle$ und $\langle j, i \rangle$ als verschiedene Konfigurationen gezählt werden. J ist somit die Energie, die mit jeder gebrochenen Bindung und einer Stufenkante der Höhe 1 verbunden ist.

Der Vorteil des DGSOS-Modells gegenüber dem anschaulicher interpretierbaren Modell mit absoluten Höhendifferenzen (ASOS Modell)

$$H = \frac{J}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} |h_i - h_j| \quad (6.6)$$

liegt darin, dass beim DGSOS-Modell zumindest der Fall der kontinuierlichen Höhenfelder analytisch zu erfassen ist, siehe auch Kapitel 6.3. Auch ist beim DGSOS-Modell besonders einfach zu sehen, dass ohne die Beschränkung auf diskrete Werte des Höhenfeldes kein Phasenübergang existiert: In zwei Dimensionen divergiert die Höhen-Korrelationsfunktion

$$G(r) = \langle [h(r) - h(0)]^2 \rangle \sim \frac{k_B T}{2\pi J} \ln r + \text{const} \quad (6.7)$$

für große Abstände $r \rightarrow \infty$ unabhängig von der Temperatur. Die Oberfläche ist folglich immer rau [37].

Das entspricht dem Verhalten für hohe Temperaturen im diskreten Modell. Für tiefe Temperaturen kann man den diskreten Charakter des Höhenfeldes jedoch nicht vernachlässigen. Die Korrelationsfunktion verhält sich logarithmisch für $r < \xi$ und sättigt für $r > \xi$, sie nimmt in etwa die Form

$$G(r) \sim A \ln[\min(r, \xi)]$$

an, wobei Amplitude A und Korrelationslänge ξ von der Temperatur $T < T_R$ abhängen. Die Oberfläche fluktuiert auf Skalen kleiner ξ wie das Gaußsche Modell, bleibt aber auf Skalen größer als ξ flach. Die Orientierung der Oberfläche bleibt auf makroskopischen Längenskalen erhalten.

Das tatsächliche Verhalten, beispielsweise der Korrelationslänge ξ , am kritischen Punkt lässt sich für das DGSOS-Modell nicht so einfach bestimmen. Dazu sind Methoden der Renormierungsgruppentheorie notwendig, auf die an dieser Stelle nicht weiter eingegangen werden kann. Eine Herleitung findet sich zum Beispiel in [77]. Das Ergebnis ist, dass die Korrelationslänge ξ sich in der Nähe des Übergangs wie

$$\xi \sim \exp \left[\frac{1}{\sqrt{T_R - T}} \right], \quad T < T_R$$

verhält und nicht wie sonst bei kritischen Phänomenen in der üblichen algebraischen Form $\xi \sim (T_R - T)^\alpha$.

6.3 Abbildung auf das zweidimensionale Coulomb-Gas

Die Zustandssumme des DGSOS-Modells ist zunächst durch

$$Z_{DG} \equiv \sum_{\{h_k\}} \exp \left[-\frac{J}{2} \beta \sum_{\langle i,j \rangle} (h_i - h_j)^2 \right], \quad \beta = \frac{1}{k_B T} \quad (6.8)$$

gegeben, wobei das Höhenfeld h_k nur ganzzahlige Werte $-\infty < h_k < \infty$ annimmt. Der Definitionsbereich lässt sich jedoch künstlich kontinuierlich machen, indem man δ -Funktionen einfügt:

$$Z_{DG} = \int \{dh_k\} \prod_k \left(\sum_{n_k} \delta(h_k - n_k) \right) \exp \left[-\frac{J}{2} \beta \sum_{\langle i,j \rangle} (h_i - h_j)^2 \right]. \quad (6.9)$$

Die n_k sind hierbei ganzzahlig. Mittels der Identität

$$\sum_{l=-\infty}^{\infty} \delta(h - l) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \exp(2\pi i n h) \quad (6.10)$$

lässt sich die Zustandssumme nun in der Form

$$Z_{DG} = Z_G Z_C \quad (6.11)$$

zerlegen, wobei es sich bei Z_G um die Zustandssumme des Gaußschen Modells auf dem Gitter mit kontinuierlichem Höhenfeld

$$Z_G = \int \{dh_k\} \exp \left[-\frac{J}{2} \beta \sum_{\langle i,j \rangle} (h_i - h_j)^2 \right] \quad (6.12)$$

und bei Z_C um die Zustandssumme des neutralen zweidimensionalen Coulomb-Gases handelt. Diese ist gegeben durch

$$Z_C = \sum_{\{n_i\}=-\infty}^{\infty} \exp \left[-\frac{\beta'}{2} \sum_{i \neq j} q_i q_j U_{ij} \right] \quad \text{mit} \quad \beta' = \frac{k_B T}{J}. \quad (6.13)$$

Die Ladungen q_i sind hier durch $q_i = 2\pi n_i$ gegeben und unterliegen der zusätzlichen Neutralitätsbedingung $\sum q_i = 0$. Für Abstände r größer als die Gitterkonstante a ist die Coulomb-Wechselwirkung auf dem Gitter U_{ij} näherungsweise durch

$$U_{ij} \approx \frac{1}{4\pi} \ln(|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|/a) + \text{const} \quad (6.14)$$

gegeben, die in zwei Dimensionen übliche logarithmische Wechselwirkung zwischen den Ladungen. Da das kontinuierliche Gaußsche Modell (6.12) keine Singularitäten aufweist, wird das kritische Verhalten des Systems allein vom Verhalten der Zustandssumme Z_C des Coulomb-Gases bestimmt. In ähnlicher Weise kann die Äquivalenz zu anderen feldtheoretischen Modellvarianten gezeigt werden.

Im Folgenden sollen die Schritte, die zur Zerlegung in die Form von Gleichung (6.11) führen, etwas genauer erläutert werden. Beginnt man mit Gleichung (6.9) und ersetzt die δ -Funktion durch die in (6.10) angegebene Identität, so erhält man zunächst

$$\int \{dh_k\} \prod_k \left(\sum_{n_k} \delta(h_k - n_k) \right) \dots = \sum_{\{n_k\}} \int \{dh_k\} \exp(2\pi i \sum_j n_j h_j) \dots$$

Damit liegt Z_{DG} in der Form

$$Z_{DG} = \sum_{\{n_k\}} \int \{dh_k\} \exp \left[i \sum_j k_j h_j - \frac{\beta J}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} (h_i - h_j)^2 \right] \quad (6.15)$$

mit $k_j = 2\pi n_j$ vor. Da es sich hierbei um ein Gauß-Integral handelt, kann man fortfahren, indem man die quadratische Form mittels Fouriertransformation

$$h_q = N^{-1/2} \sum_j h_j e^{iqj} \quad \text{und} \quad (6.16)$$

$$k_q = N^{-1/2} \sum_j k_j e^{iqj} \quad (6.17)$$

diagonalisiert. Damit ist

$$Z_{DG} = \sum_{\{n_k\}} \int \{dh_q\} \exp \left[i \sum_j h_q k_{-q} - 4J\beta \sum_q h_q h_{-q} [1 - \phi(q)] \right] \quad (6.18)$$

mit $\phi(q) \equiv \frac{1}{2}(\cos q_x + \cos q_y)$ und die Integration kann unter Ausnutzung der Identität

$$\int_{-\infty}^{\infty} dx e^{-ax^2+ibx} = (\pi/a)^{1/2} e^{-b^2/4a} \quad (6.19)$$

ausgeführt werden. Es ist dann

$$Z_{DG} = \prod_q \left(\frac{\pi}{8\beta[1 - \phi(q)]} \right)^{1/2} \times \sum_{\{n_i\}} \exp \left(- \sum_q \frac{h_q h_{-q}}{16\beta[1 - \phi(q)]} \right), \quad (6.20)$$

wobei es sich bei

$$Z_G = \prod_q \left(\frac{\pi}{8\beta[1 - \phi(q)]} \right)^{1/2}$$

um die Zustandssumme des kontinuierlichen Gaußschen Modells handelt. Der zweite Term lässt sich umschreiben zu

$$Z_C = \sum_{\{n_i\}} \exp \left[-\frac{1}{2}\beta' \left(\sum_j k_j \right)^2 V(0) + \frac{1}{2}\beta' \sum_{l \neq m} k_l k_m U(r_{lm}) \right]$$

mit $\beta' = 1/\beta J$ und

$$V(0) = \frac{1}{8N} \sum_q \frac{1}{1 - \phi(q)},$$

und

$$U(r_{lm}) = \frac{1}{8N} \sum_q \frac{1 - e^{iqr_{lm}}}{1 - \phi(q)}.$$

Für Abstände $r_{ij} \gg a$ ergibt sich die logarithmische Wechselwirkung (6.14) zwischen den „Ladungen“ k_j . Da im Limes $N \rightarrow \infty$ die Größe $V(0)$ gegen Unendlich strebt, tragen Konfigurationen mit $\sum_j k_j \neq 0$ nicht zur Zustandssumme bei. Für alle mit endlicher Wahrscheinlichkeit auftretenden Konfigurationen gilt somit $\sum_j k_j = 0$, das Elektronengas ist folglich neutral.

6.4 Mean-Field-Approximation des zweidimensionalen Coulomb-Gases

Eine Mean-Field Beschreibung des Phasenübergangs für das Coulomb-Gas wurde bereits 1973 von J. M. Kosterlitz und D. J. Thouless vorgestellt [62] und von A. P. Young erweitert [78]. Ähnliche Rechnungen finden sich in [79, 80]. Da es sich um ein neutrales Coulomb-Gas handelt, d. h. die Anzahl der positiven Ladungen der Anzahl der negativen Ladungen entspricht, kann man gedanklich jeweils eine positive und eine negative Ladung zu einem Paar zusammenfassen. Für ein einzelnes ganzzahliges Ladungspaar reduziert sich der Hamiltonian aus Gleichung (6.13) für Abstände $r > a$ auf den Ausdruck

$$H = \pi \ln(r/a).$$

Der Einfachheit halber beziehen wir den Faktor π in die Temperaturskala $\tilde{\beta}$ ein:

$$\tilde{\beta} = \pi\beta'.$$

Dann ist die Kraft auf ein Teilchen in Abwesenheit anderer Ladungen

$$K(r) = \frac{1}{\varepsilon r}$$

mit $\varepsilon = 1$ gegeben. Um die Wirkung der anderen Ladungen mit einzubeziehen ersetzen wir diese Beziehung durch

$$K(r, t) = \frac{1}{\varepsilon(r, t) r}, \quad (6.21)$$

wobei $\varepsilon(r, t)$ als effektive Dielektrizitätskonstante die Modifikationen des Potentials auf Skala r beschreibt.

Ausgangspunkt der analogen hier vorgestellten Rechnung ist die Fokker-Planck-Gleichung

$$\partial_t p(r, t) = \frac{1}{r} \partial_r [r (K(r, t) + T \partial_r) p(r, t)] \quad (6.22)$$

für die radiale Wahrscheinlichkeitsdichte $p(r, t)$, solche Ladungspaare im Abstand r vorzufinden. Der diffusive zweite Term auf der rechten Seite ist proportional zur Temperatur T , der erste Term ist als Gradient der logarithmischen Wechselwirkung des Coulomb-Gases in zwei Dimensionen durch Gleichung (6.21) gegeben. Die effektive Dielektrizitätskonstante $\varepsilon(r, t)$ lässt sich selbstkonsistent in der Form

$$\varepsilon(r, t) = 1 + \frac{8\pi^2}{T} \int_{r_0}^r p(\rho, t) \frac{\rho^3 d\rho}{r_0^4} \quad (6.23)$$

schreiben. Die Idee hinter der Definition von $\varepsilon(r, t)$ ist, dass das Wechselwirkungspotential zweier Testladungen durch die Anwesenheit der anderen Ladungspaare abgeschirmt wird. Gleichung (6.23) definiert eine effektive Dielektrizitätskonstante, welche das Verhalten des Systems auf der Längenskala r beschreibt. Die Verknüpfung der relativen Dielektrizitätskonstante $\varepsilon(r, t) = 1 + 4\pi\chi(r, t)$ mit der elektrischen Suszeptibilität χ liefert den Ansatz

$$\varepsilon(r + dr, t) = \varepsilon(r, t) + 4\pi d\chi(r, t). \quad (6.24)$$

Ist die Suszeptibilität eines Ladungspaars mit Abstand r' durch r'^2/T gegeben, und nimmt man weiter an, dass die effektive Wechselwirkung zwischen Ladungen mit Abstand r nur durch enger gebundene Dipole $r' < r$ beeinflusst wird, ergibt sich die sukzessive Zunahme von ε aus der Suszeptibilität $d\chi(r, t)$ der Dipole mit Abstand r . Die Anzahl der Dipole ist durch die Fläche $2\pi r dr$ und die Wahrscheinlichkeit $p(r, t)$ gegeben. Folglich ist

$$d\chi(r, t) = \frac{2\pi p(r, t) r^3}{T} dr.$$

Die Integration liefert dann den in Gleichung (6.23) angegebenen Ausdruck für $\varepsilon(r, t)$. Hierzu ist anzumerken, dass mit der Annahme, dass enger gebundene Ladungspaare

die schwächer gebundenen beeinflussen und nicht umgekehrt, schon das Ergebnis einer systematischen Renormierungstheorie vorweggenommen wird. Im Gleichgewicht

$$(K(r) + T\partial_r)p(r) = 0 \quad (6.25)$$

kann man die Wahrscheinlichkeitsverteilung direkt angeben:

$$p(r) = z \exp \left[-\frac{1}{T} \int_{r_0}^r K(\rho) d\rho \right]. \quad (6.26)$$

Die Konstante z ergibt sich aus der Normierung der Wahrscheinlichkeitsdichte p auf die gegebene Anzahl der Ladungen. Mithilfe der Beziehungen

$$p = \frac{Tr_0^4}{8\pi^2 r^3} \varepsilon', \quad p' = \frac{Tr_0^4}{8\pi^2 r^4} (r\varepsilon'' - 3\varepsilon') \quad (6.27)$$

lässt sich Gleichung (6.25) in eine Gleichung für ε transformieren

$$4 \left(\frac{1}{4\varepsilon(r)} - T \right) \varepsilon'(r) + T (r\varepsilon'(r))' = 0. \quad (6.28)$$

Die Integration von Gleichung (6.28) mit den Randbedingungen

$$\varepsilon(r_0) = 1, \quad r_0 \varepsilon'(r_0) = \frac{8\pi^2}{T} z \quad (6.29)$$

führt zu der Gleichung

$$\ln \varepsilon(r) = 4T[\varepsilon(r) - 1] + 8\pi^2 z - Tr\varepsilon'(r). \quad (6.30)$$

Da im Limes großer Abstände $r \rightarrow \infty$ der letzte Term in Gleichung (6.30) wegen

$$\lim_{r \rightarrow \infty} r\varepsilon'(r) = 0$$

verschwindet, gilt für makroskopische $\varepsilon = \varepsilon(\infty)$ eine „thermische Zustandsgleichung“

$$\ln \varepsilon = 4T(\varepsilon - 1) + 8\pi^2 z. \quad (6.31)$$

Mit steigender Temperatur nimmt die Steigung der rechten Seite als Funktion von ε immer weiter zu. Bei einer Temperatur T_K schließlich berührt die Gerade den Logarithmus nur noch in einem Punkt. Es gilt

$$4T_K(z) = \frac{1}{\varepsilon_K(z)}, \quad \ln \varepsilon_K(z) = 4T_K(z)(\varepsilon_K(z) - 1) + 8\pi^2 z. \quad (6.32)$$

Da z als Normierungsfaktor der Wahrscheinlichkeitsdichte eine positive Zahl ist, gilt $4T_K(z) < 1$. Im weiteren Verlauf wird nun die Gleichung (6.30) um den kritischen Punkt entwickelt. Mit der Definition von

$$\eta(r) \equiv \frac{\varepsilon_K - \varepsilon(r)}{\varepsilon_K}, \quad \tau \equiv \frac{T - T_K}{T_K} \quad (6.33)$$

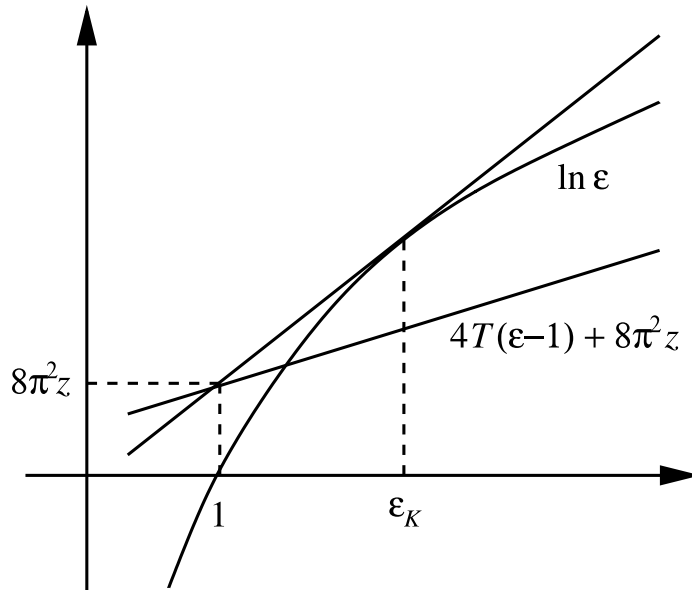


Abbildung 6.1: Skizze des Verhaltens der linken und der rechten Seite von Gleichung (6.31) als Funktion von ε .

ergibt sich aus

$$\ln \frac{\varepsilon(r)}{\varepsilon_K} = 4T[\varepsilon(r) - 1] - 4T_K[\varepsilon_K - 1] - Tr\varepsilon'(r) \quad (6.34)$$

durch einfaches Einsetzen

$$\ln(1 - \eta(r)) = -2(1 - \tau)\eta(r) - 2(1 - 2T_K)\tau - \frac{1}{2}(1 - \tau)r\eta'(r). \quad (6.35)$$

Entwickelt man die linke Seite bis zur Ordnung $\mathcal{O}(\eta^2)$ und vernachlässigt die Korrekturen aufgrund von τ im letzten Term der rechten Seite, so erhält man

$$\eta^2(r) - 4(1 - 2T_K + \frac{\eta}{2})\tau = -r\eta'(r). \quad (6.36)$$

Nimmt man zusätzlich an, dass η klein im Vergleich zu $1 - 2T_K$ ist, lässt sich die so erhaltene Gleichung

$$\eta^2(r) - 4(1 - 2T_K)\tau = -r\eta'(r) \quad (6.37)$$

zunächst im Limes $r \rightarrow \infty$ wegen $\lim_{r \rightarrow \infty} r\eta'(r) = 0$ lösen:

$$\eta \equiv \eta(\infty) = 2\sqrt{(1 - 2T_K)\tau}. \quad (6.38)$$

Die vollständige Lösung ergibt sich dann zu

$$\frac{\eta(r)}{\eta} = \frac{1 + e^{-2\eta \ln(r/r_1)}}{1 - e^{-2\eta \ln(r/r_1)}}. \quad (6.39)$$

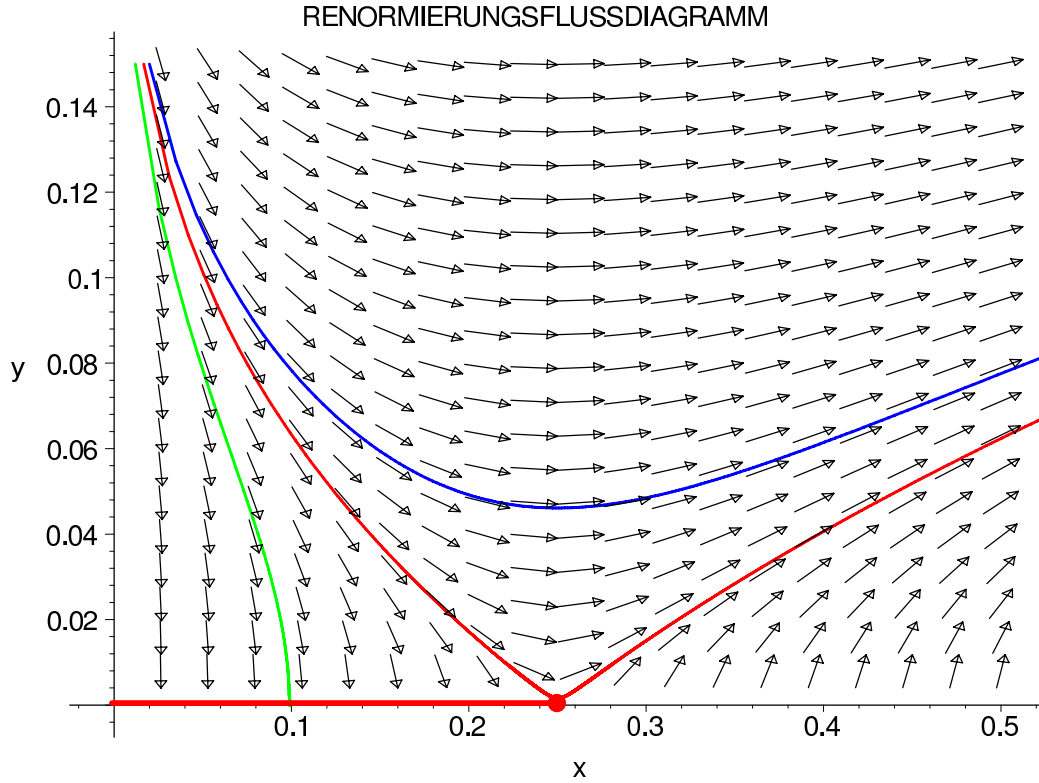


Abbildung 6.2: Renormierungsfluss-Diagramm für den Kosterlitz-Thouless-Übergang. Die x -Achse entspricht $x = \tilde{\varepsilon}$. Die Pfeile des Vektorfeldes symbolisieren die lokale Flussrichtung; die drei Trajektorien veranschaulichen den unterkritischen, kritischen und überkritischen Fall. Im unterkritischen Fall endet der Renormierungsfluss auf der x -Achse im Intervall $[0, \frac{1}{4}]$ – einer Linie von kritischen Punkten – und sowohl die makroskopische Dielektrizitätskonstante als auch das vierte Moment der radialen Wahrscheinlichkeitsverteilung sind endlich.

Damit lässt sich die Lösung in der Skalenform

$$\eta(r, \tau) = \sqrt{\tau} \varphi(\sqrt{\tau} \ln(r/r_1))$$

schreiben, mit

$$\varphi(x) = \frac{A}{2} \frac{1 + e^{-Ax}}{1 - e^{-Ax}}, \quad A = 4\sqrt{(1 - 2T_K)}.$$

Für $x \gg 2/A$ geht diese Funktion $\varphi(x)$ gegen $A/2$, für $x \ll 2/A$ ist $\varphi(x) \sim 1/x$. Die charakteristische Länge ξ , bei der das Verhalten umschlägt, kann aus $\sqrt{\tau} \ln(\xi/r_1) = 2/A$ gewonnen werden:

$$\xi/r_1 \sim \exp \left[\frac{2A^{-1}}{\sqrt{\tau}} \right]. \quad (6.40)$$

Dies entspricht der in Kapitel 6.2 erwähnten wesentlichen Singularität der Korrelationslänge.

Gleichung (6.24) kann aber auch als Renormierungsgleichung für ε verstanden werden. Mit den Definitionen

$$\tilde{\varepsilon} \equiv \varepsilon T, \quad r \equiv r_0 \exp(l), \quad y^2 \equiv r^4 p(r),$$

ergibt sich dann für $\tilde{\varepsilon}$

$$\frac{d\tilde{\varepsilon}}{dl} = 8\pi^2 y^2. \quad (6.41)$$

Analog lässt sich für y aus Gleichung (6.25) eine Renormierungsgleichung konstruieren. Es ist zunächst

$$\frac{dy}{dr} = \frac{1}{2y} \left[4r^3 p(r) + r^4 \frac{dp(r)}{dr} \right].$$

Mit der stationären Wahrscheinlichkeitsverteilung

$$\frac{dp(r)}{dr} = -\frac{1}{\tilde{\varepsilon}} p(r)$$

ergibt sich dann leicht die gesuchte Renormierungsgleichung für y

$$\frac{dy}{dl} = \frac{1}{2} \left[4 - \frac{1}{\tilde{\varepsilon}} \right] y. \quad (6.42)$$

Der durch Gleichungen (6.41) und (6.42) definierte Fluss kann in einem Renormierungsfluss-Diagramm graphisch aufgetragen werden, siehe Abbildung 6.2. Entscheidend für das makroskopische Verhalten des Systems ist, welchem Wert die Koppelungsparameter $\tilde{\varepsilon}$ und y für $l \rightarrow \infty$ zustreben.

6.5 Universelles Verhalten am kritischen Punkt

Aus dem Verhalten des Coulomb-Gases am kritischen Punkt

$$\varepsilon_k T_K = 4$$

lässt sich nun zurück auf die Korrelationen (6.7) des DGSOS-Modells

$$G(r) = \langle [h(r) - h(0)]^2 \rangle \sim \frac{1}{2\pi\beta J} \ln(r/a)$$

am kritischen Punkt schließen. Es gilt nämlich

$$\frac{1}{\beta_k J} = \frac{\varepsilon_k T_k}{\pi} = \frac{4}{\pi}.$$

Die logarithmischen Korrelationen erhalten eine universelle Amplitude

$$G(r) = \langle [h(r) - h(0)]^2 \rangle \sim \frac{2}{\pi^2} \ln(r/a). \quad (6.43)$$

Diese Eigenschaft der Korrelationsfunktion kann zur Bestimmung der Übergangstemperatur herangezogen werden.

6.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden wesentliche Elemente der Theorie zum klassischen Aufrauungsübergang (Kosterlitz-Thouless) einer Oberfläche vorgestellt. Vom diskreten Gaußschen Modell einer Kristalloberfläche ausgehend wurde die Äquivalenz zum zweidimensionalen Coulomb-Gas gezeigt. Anhand des Coulomb-Gases wurden in einer Mean-Field-Rechnung die kritischen Eigenschaften des Kosterlitz-Thouless-Phasenübergangs hergeleitet. Über die Dualität der Modelle konnten Rückschlüsse auf die Eigenschaften des diskreten Gaußschen Modells am kritischen Punkt gezogen werden.

Kapitel 7

Aufrauungsübergang mit elastischer Wechselwirkung

Ausgehend von dem im Kapitel 5 entwickelten Funktional der elastischen Energie einer Adsorbatschicht lässt sich im Prinzip das volle Szenario der Molekularstrahl-epitaxie mit Deposition, Diffusion, Evaporation und Readsorption definieren. Wir betrachten hier die äußerst wichtigen Gleichgewichtseigenschaften einer Kristalloberfläche mit elastischer Wechselwirkung. Diese Gleichgewichtseigenschaften bilden die Grundlage für viele Nichtgleichgewichtsprozesse, die sich vielfach als Relaxation ins Gleichgewicht beschreiben lassen.

Da eine heteroepitaktisch verspannte Adsorbatschicht der Grinfeld-Instabilität unterliegt, beschränken wir uns hier auf eine homoepitaktische Schicht. Berücksichtigt man, dass sich eine kohärente homoepitaktische Schicht nicht vom Substrat unterscheidet, auf dem sie gewachsen ist, geht es im Folgenden nicht etwa um die Aufrauungseigenschaften einer dünnen Adsorbatschicht [81] oder die Aufrauung eines Kristalls unter einer sehr dünnen Adsorbat-Schicht [82], sondern um das generische thermodynamische Gleichgewicht einer Kristalloberfläche, auf der Oberflächendefekte elastisch wechselwirken.

Ein wesentlicher Teil der in diesem Kapitel präsentierten Ergebnisse wurde in [83] veröffentlicht.

7.1 Motivation

Es ist bekannt, dass eine Kristalloberfläche bei niedrigen Temperaturen die Form einer Facette annimmt. Die Oberfläche ist mikroskopisch glatt. Mit steigender Temperatur bilden sich jedoch Inseln und Löcher auf der Facette. Diese räumlich beschränkten Fluktuationen erzeugen allmählich eine nicht verschwindende Grenzflächendicke und die Facette weicht immer mehr auf. Diese Grenzflächendicke divergiert schließlich bei einer endlichen Temperatur, der Aufrauungstemperatur, bei der die Orientierung der Facette vollständig verloren geht.

Für viele verschiedene diskrete *Solid-On-Solid*-Modelle (SOS) konnte gezeigt werden, dass sie einen Phasenübergang vom Kosterlitz-Thouless Typ aufweisen. Die meisten dieser Modelle beinhalten lokale Wechselwirkungen, bestenfalls Wechselwirkungen zu den übernächsten Nachbarn. In einigen dieser Modelle tritt ein weiterer Übergang auf, der mit der Ordnung innerhalb einer Lage zu tun hat. Dieser Phasenübergang wird üblicherweise als *Preroughening* bezeichnet [84–91].

Die Wechselwirkung zwischen Oberflächendefekten aufgrund der elastischen Deformation des Kristalls hat jedoch einen langreichweitigen Charakter. Der Einfluss dieser langreichweitigen Wechselwirkung auf die Aufrauung einer Kristalloberfläche wurde nach unserem Kenntnisstand bisher noch nicht untersucht, weder in analytischer noch in numerischer Form.

Um den Blick auf das Wesentliche zu lenken, lassen wir die Frage eines möglichen von kurzreichweitigen Details abhängigen Preroughening-Übergangs außer Acht und konzentrieren uns hier auf den Einfluss langreichweitiger Effekte.

Im Folgenden werden zunächst die hier verwendeten Resultate aus vorigen Kapiteln zusammengefasst um einen direkten Einstieg zu erleichtern. Ebenso wird das verwendete Modell – durch den Wegfall der heteroepitaktischen Effekte in vereinfachter Form – nochmals vorgestellt. Es folgen die Ergebnisse der Monte-Carlo-Simulationen und deren Interpretation.

7.2 Stufenwechselwirkung

Die elastische Wechselwirkung von Stufen auf einem halbumendlichen Kristall kann in Form von elastischen Dipolen beschrieben werden, welche an den Stufenkanten lokalisiert sind [16, 17, 40, 56].

Auf der Grundlage der Greenschen Funktion G_{ij} für die elastischen Verschiebungsfelder eines elastischen Halbraums ist man in der Lage, das Verschiebungsfeld $u_i(\mathbf{r})$ als Reaktion auf eine auf die Oberfläche wirkende Kraftdichte $f_j(\mathbf{r})$ zu berechnen. Der in der Oberflächen-Ebene liegende zweidimensionale Vektor \mathbf{r} besitzt die Komponenten r_x und r_y . Das Verschiebungsfeld $u_i(\mathbf{r})$ zur Kraftdichte $f_j(\mathbf{r})$ ist gegeben durch

$$u_i(\mathbf{r}) = \int d^2r' G_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') f_j(\mathbf{r}'). \quad (7.1)$$

Die Indizes i und j entsprechen den Richtungen x , y und z . Über mehrfach auftretende Indizes wird implizit summiert.

Die elastische Energie E_{el} lässt sich dann in der Form

$$\begin{aligned} E_{\text{el}} &= - \int d^2r u_i(\mathbf{r}) f_i(\mathbf{r}) \\ &= - \iint d^2r d^2r' G_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') f_j(\mathbf{r}') f_i(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (7.2)$$

aus den Kraftdichten und der Greenschen Funktion berechnen. Nutzt man aus, dass Kräfte nur in der Nähe der Stufen auftreten, und dass das Monopol-Moment an der Stufe verschwindet, lässt sich die Energie in Form einer Multipolentwicklung als Resultat der Kraft-Dipoldichten $q_{ik}(\mathbf{r})$ schreiben:

$$E_{\text{el}} \approx \iint d^2r d^2r' q_{jk}(\mathbf{r}') q_{il}(\mathbf{r}) \partial_k \partial_l G_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (7.3)$$

Mithilfe von Symmetrieargumenten kann man zwei Typen von Kraft-Dipolen bestimmen, von denen man annimmt, dass sie an Stufenkanten auftreten können [16]. Der eine Typ basiert auf Kräften innerhalb der Oberflächenebene, die senkrecht zur Stufenkante liegen, der andere entsteht durch Kräfte, welche orthogonal zur Oberfläche angeordnet sind. Aufgrund der Struktur der Greenschen Funktion zeigen beide Typen von Dipol-Tensoren ein unterschiedliches Verhalten [16, 56]: Während der erste Typ zu einer strikt repulsiven Wechselwirkung zwischen Stufen führt, folgt aus dem zweiten Typ eine Stufen-Wechselwirkung, die vom relativen Vorzeichen der Stufe abhängt und in Folge attraktiv oder repulsiv sein kann. Es gibt jedoch Materialien [57, 58], bei denen der vorzeichenabhängige Anteil der Wechselwirkung gegenüber dem rein repulsiven Anteil vernachlässigt werden kann. Wir werden uns im Folgenden auf solche Materialien beschränken und von einer strikt repulsiven Wechselwirkung zwischen Stufen ausgehen.

Beschränkt man sich auf die isotrope lineare Theorie, so nimmt die Greensche Funktion $G_{ij}(\mathbf{r})$ für den elastischen Halbraum die einfache Form

$$G_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{1 + \sigma}{\pi E} \frac{1}{r} \left\{ (1 - \sigma) \delta_{ij} + \sigma \frac{r_i r_j}{r^2} \right\} \quad (7.4)$$

an, wobei i und j nun auf die Richtungen x und y in der Ebene beschränkt sind [17]. Der skalare Abstand innerhalb der Ebene ist durch $r = |\mathbf{r}|$ gegeben. Die einzigen Materialparameter, die im Rahmen der linearen isotropen Theorie und damit in (7.4) noch auftreten, sind die dimensionslose Poisson-Zahl σ und der Elastizitätsmodul E .

Für eine in y -Richtung ausgedehnte Stufe würde man nun einen Dipol-Tensor der Form $q_{ij} \sim \delta_{ix} \delta_{jx}$ annehmen. Das bedeutet, dass die Wechselwirkung zwischen zwei Linienelementen von der relativen Orientierung dieser Linienelemente abhängt.

Im Falle zweier paralleler Stufen obigen Typs, die in x -Richtung den Abstand d haben, lässt sich die Wechselwirkungsenergiedichte w (pro Fläche zum Quadrat) durch Auswertung des Integranden in (7.3) für zwei Kraft-Dipole des Typs $q_{ij} = \delta_{ix} \delta_{jx}$ berechnen. Sie ist gegeben durch

$$w(r, \phi) = \gamma \left[\frac{3 \cos \phi - 1}{r^3} + \frac{\sigma}{1 - \sigma} \frac{2 + 15 \cos^4 \phi - 15 \cos^2 \phi}{r^3} \right], \quad (7.5)$$

wobei ϕ den Winkel zwischen dem Abstandsvektor \mathbf{r} und der Orientierung der Dipole bezeichnet. Wird der Abstand der Dipole entlang der Stufen mit y bezeichnet, so

kann der Winkel ϕ mit $\phi = \arctan(y/d)$ angegeben werden, siehe Abbildung 5.3. Der Faktor γ ist gegeben durch

$$\gamma = \frac{1 - \sigma^2}{\pi E} Q^2, \quad (7.6)$$

mit Q als Dipolmoment pro Länge der Stufe. Er legt die Skala der elastischen Wechselwirkungsenergie fest.

Integriert man die Energiedichte für obige Konfiguration zweier paralleler Stufen im Abstand d , so ist die Energie pro Länge der Stufe

$$\tilde{W} = 4\gamma \frac{1}{d^2} - 2\gamma \frac{1}{\varepsilon^2} \frac{1 - 2\sigma}{1 - \sigma}, \quad (7.7)$$

wobei die Wechselwirkung auf Abstände größer als die Cutoff-Länge ε beschränkt wurde. Man beachte, dass der zweite Term, welcher zur Linienenergie beiträgt, für alle erdenklichen Poisson-Zahlen $-1 \leq \sigma \leq 1/2$ einen negativen Beitrag liefert.

Um eine weitere Vereinfachung der Wechselwirkung zwischen Stufen zu machen, vergleichen wir das obige Resultat zum hypothetischen Fall einer rein skalaren $1/r^3$ -Stufenwechselwirkung, welche mit isotropen Dipolen $q_{ij} \sim \delta_{ij}$ assoziiert werden kann. Die Wechselwirkungsenergie pro Länge der Stufe aufgrund isotroper Dipole ist in diesem Fall

$$\tilde{W}_{\text{scalar}} = 4\gamma \frac{1}{d^2} + 2\gamma \frac{1}{\varepsilon^2}. \quad (7.8)$$

Daraus lässt sich schließen, dass zumindest in dieser etwas speziellen Geometrie der einzige Unterschied eine Änderung der Linienenergie der Stufe ist, welche ihre Hauptbeiträge von kurzreichweitigen Wechselwirkungen bekommt.

Aufgrund des in diesem Kapitel verfolgten Ziels, den Einfluss der langreichweitigen Wechselwirkung auf den thermischen Aufrauungsprozess zu untersuchen, können wir die Winkelabhängigkeit vernachlässigen und gehen im Folgenden von einer Beschreibung durch isotrope elastische Dipole aus. Dies führt zu einer einfachen isotropen $1/r^3$ -Wechselwirkung zwischen Kraft-Dipolen. Als Nebeneffekt ist der elastische Beitrag zur Linienenergie der Stufe immer positiv.

7.3 Modellbeschreibung

Im Rahmen eines *Solid-On-Solid*-Modells beschreiben wir die Kristalloberfläche durch ein einfaches Höhenfeld h_i von ganzzahligen Vielfachen der Gitterkonstante a . Wie in einem gewöhnlichen SOS-Modell sind auch hier Überhänge verboten.

Im Gegensatz zur vielfach üblichen Definition der Oberflächenenergie (Summe über nächste Nachbarn)

$$E_{\text{surf}} = \frac{J}{2a^\alpha} \sum_{\langle i,j \rangle} |h_i - h_j|^\alpha, \quad (7.9)$$

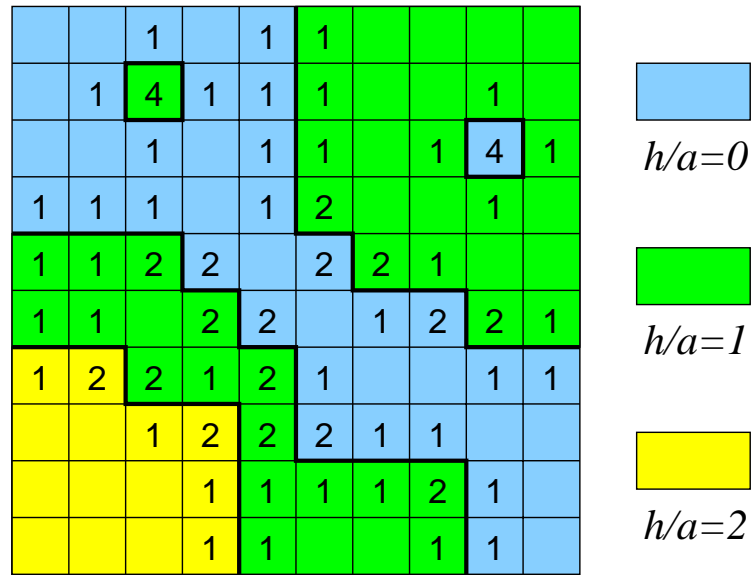


Abbildung 7.1: Die Anzahl der Dipol-Ladungen, die den Gitterplätzen zugeordnet werden, ist proportional zur kumulativen absoluten Höhendifferenz entsprechend Gleichung (7.10).

mit Kopplungskonstante J und $\alpha = 1$ für das *Absolute Solid-On-Solid*-Modell (ASOS) und $\alpha = 2$ für das *Discrete Gaussian Solid-On-Solid*-Modell (DGSOS), definieren wir eine elastische Wechselwirkung zwischen Defekten über ein Feld von isotropen elastischen Kraft-Dipolen q . Jedem Gitterplatz ist eine Anzahl von Dipol-Ladungen q_k zugeordnet, welche von der Anzahl der absoluten Höhendifferenzen zu den Nachbarplätzen abhängt. Der Gitterplatz k trägt folglich eine Anzahl

$$q_k = \frac{1}{a} \sum_{\langle i,j \rangle} |h_i - h_j| \delta_{ik} \quad (7.10)$$

von Dipol-Ladungen. Abbildung 7.1 zeigt beispielhaft die Ladungszuordnung für eine bestimmte Konfiguration des Höhenfeldes. Da die Ladungen im Rahmen dieses Modells auf den Gitterplätzen und nicht auf den Kanten selbst sitzen, wird die Erhaltung der Symmetrie $h \rightarrow -h$ in Gleichung (7.10) mit einer recht breiten Ladungsverteilung an den Kanten bezahlt.

Die elastischen Dipol-Ladungen wechselwirken, in unmittelbarer Konsequenz von Gleichung (7.8), über ein modifiziertes r^{-3} Wechselwirkungspotential $\Psi_{p_{\max}}(r)$,

$$\Psi_{p_{\max}}(r) = \min \left((a/r)^3, p_{\max} \right), \quad (7.11)$$

wobei r der Abstand innerhalb der Ebene ist und p_{\max} das Potential in der Nähe der Singularität $r = 0$ abschneidet. Für Abstände $a/r < \sqrt[3]{p_{\max}}$ ergibt sich das einfache $1/r^3$ -Potential, das heißt $\Psi_{p_{\max}}(r) = (a/r)^3$, andernfalls ist das Potential konstant und es gilt $\Psi_{p_{\max}}(r) = p_{\max}$.

Die elastische Energie folgt nun direkt aus der Wechselwirkung der in Gleichung (7.10) definierten Dipol-Ladungen mittels des durch (7.11) gegebenen Potentials. Es gilt

$$E_{\text{el}} = \frac{w_{\text{el}}}{2} \sum_{i,j} q_i q_j \Psi_{p_{\text{max}}}(r_{ij}), \quad (7.12)$$

wobei r_{ij} den Abstand zwischen den Gitterplätzen i und j bezeichnet. Die elastische Kopplungskonstante w_{el} kann so gewählt werden, dass die elastische Abstoßung zwischen Defekten die gewünschte Stärke erreicht. Sowohl i als auch j laufen in der Summe (7.12) über alle Gitterplätze. Der Fall $i = j$ ist nicht ausgenommen.

Zu einem späteren Zeitpunkt werden wir die Reichweite der Wechselwirkung einschränken. Zu diesem Zweck definieren wir hier ein Potential $\Psi_{p_{\text{max}},l}$ mit einer Cutoff-Länge l

$$\Psi_{p_{\text{max}},l}(r) = \begin{cases} \Psi_{p_{\text{max}}}(r) & \text{falls } r \leq l \\ 0 & \text{falls } r > l \end{cases}, \quad (7.13)$$

welches für Abstände größer als l verschwindet.

Für zwei gerade Stufen der Länge L im Abstand d besteht diese elastische Energie aus den Selbstenergien der Stufen und dem erwarteten Wechselwirkungsterm

$$E_{\text{int}} \approx 8 w_{\text{el}} \frac{La}{d^2}, \quad (7.14)$$

für große Abstände $d \gg a$. Berücksichtigt man die Limitierung des Potentials durch den Parameter p_{max} , so ist ab $d/a \gg \sqrt[3]{p_{\text{max}}}$ das Verhalten aus (7.14) zu erwarten.

Aufgrund der strikten Positivität der Selbstenergie der Stufe – allein auf Basis der hier definierten elastischen Energie – kann man auf die Einführung eines gesonderten Oberflächenterms verzichten. Die Stufenenergie entsteht dann in generischer Weise als Selbstenergie der Kraft-Dipole aus dem Funktional der elastischen Energie. Durch die Wahl von p_{max} kann dann die Selbstenergie einer geraden Stufe, also die Linienenergie, unabhängig von der langreichweitigen Wechselwirkung gewählt werden.

Für festes p_{max} ist die relative Amplitude von Linienenergie und Stufenwechselwirkung festgelegt und man kann sich auf den Crossover zwischen einem lokalen und einem langreichweitigen Modell abhängig von der Cutoff-Länge l konzentrieren. Dieser Übergang wird anhand der Potentiale $\Psi_{1,l}$ mit $p_{\text{max}} = 1$ untersucht. Später werden auch andere relative Amplituden für das Potential $\Psi_{p_{\text{max}}}$ untersucht. Diese Rechnungen werden dann für unendliche Reichweite des Potentials durchgeführt.

Die Monte-Carlo-Simulation findet auf einem quadratischen Gitter mit Kantenlänge $(L/a)^2 = 64 \times 64$ bis 128×128 statt. Um die Energiedifferenz für jeden Monte-Carlo-Schritt zu berechnen, wird das in Kapitel 5 vorgestellte Multigrid-Verfahren verwendet, welches auch schon beim Submonolagen-Wachstum in Kapitel 4 erfolgreich genutzt wurde.

Dieses Multigrid-Verfahren verringert den Aufwand von Ordnung $(L/a)^4$ auf Ordnung $(L/a)^2 \ln(L/a)$ für jeden Zeitschritt. Dieser Aufwand muss jedoch mit einem weiteren

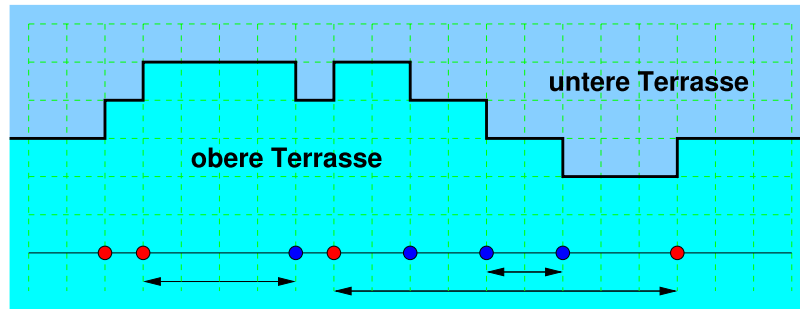


Abbildung 7.2: Der zweidimensionale Stufenverlauf wird auf ein eindimensionales Gitter-Spin-Modell projiziert. Ein Spin kann die Zustände „Kink rauf“, „Kink runter“ und „kein Kink“ annehmen. Abstände zwischen Kinks werden entlang der Linie gemessen.

Faktor $(L/a)^2$ multipliziert werden, welcher der Anzahl der Zeitschritte entspricht, die das System benötigt um ins Gleichgewicht zu relaxieren.

Ohne den Einsatz des Multigrid-Verfahrens hätte der Rechenaufwand die Größe der mit dieser Methode behandelbaren Systeme auf $L/a \leq 25$ beschränkt. Das hier eingesetzte Multigrid-Verfahren ermöglicht die Simulation sehr viel größerer Systeme. Damit sind auch aussagekräftigere Ergebnisse zu erwarten. Es ist natürlich richtig, dass eine Systemgröße $L/a \leq 128$ immer noch relativ klein ist, wenn es um einen Phasenübergang geht, bei dem an einer kritischen Temperatur die langreichweitige Ordnung verschwindet. Um das kritische Verhalten der Korrelationslänge in der Nähe des Übergangs aufzulösen, sind Systeme mit mehr als $10^6 \times 10^6$ Gitterplätzen nötig [92]. Es sollte deshalb klar sein, dass die im Folgenden präsentierten Ergebnisse eher einen qualitativen als einen quantitativen Charakter haben.

Dennoch haben unsere vergleichenden Rechnungen bei $L/a = 128$ zu dem DGSOS- und ASOS-Modell gezeigt, dass die ermittelten Aufrauungstemperaturen mit $k_B T_R \approx 1.5J$ und $k_B T_R \approx 1.25J$ recht gut mit den bekannten Resultaten [93] übereinstimmen.

7.4 Freie Energie einer Stufe

Bevor wir uns im Abschnitt 7.5 den Ergebnissen des zweidimensionalen Modells zuwenden, wollen wir zunächst versuchen, mögliche Effekte anhand der freien Energie einer eindimensionalen Stufe auf einer zweidimensionalen Oberfläche zu verstehen. Es ist zwar richtig, dass sich die Natur des Aufrauungsübergangs im quasi-eindimensionalen Bild nicht richtig fassen lässt, ein Verständnis dafür, warum es überhaupt zu einem Aufrauungsübergang kommt, lässt sich aber schon durch die Betrachtung einer einzigen Stufe gewinnen. Schließlich ist der Aufrauungsübergang in einer Formulierung äquivalent dazu, dass sich im System eine unendlich lange Stufe ausbildet. Zunächst wird ein lokales eindimensionales Modell einer Stufe vorgestellt, welches später um eine langreichweitige Wechselwirkung entlang der Stufe erweitert

wird. Um Missverständnissen vorzubeugen muss an dieser Stelle betont werden, dass das eindimensionale Modell selbst nicht dem hier betrachteten Aufräuungsübergang unterliegt. Der Aufräuungsübergang kommt dadurch zustande, dass die (eindimensionale) Stufe ein Objekt auf einer (zweidimensionalen) Oberfläche ist. Wird die freie Linienenergie der Stufe negativ, können sich auf der Oberfläche unendlich lange Stufen ausbilden und die Oberfläche wird makroskopisch rau, siehe hierzu [94]. Dieser Vorgang widerspricht nicht der bekannten Aussage, dass in eindimensionalen Systemen ein Phasenübergang nur am thermischen Nullpunkt auftreten kann.

Das Phänomen des Aufräuungsübergangs an sich kann man schon am eindimensionalen Modell einer einzelnen Stufe verstehen. Die Stufe habe eine Länge von N Gittereinheiten. An jeder dieser N Stellen hat die Stufe die Möglichkeit, ihre Lage um eine Gittereinheit in die eine oder die andere Richtung zu verschieben, oder die Lage beizubehalten, siehe Abbildung 7.2. Diese Änderungen werden nachfolgend Kinks genannt, wobei die Anzahl der Kinks in die eine Richtung N^+ und in die andere Richtung N^- genannt wird. Während die Energie einer zunächst glatten Stufe proportional zu einer Linienenergie w_l ist, erhöhen die Kinks die Energie proportional zu einer Kink-Energie w_k . Gleichzeitig hat die Anzahl der Kinks aber auch Auswirkungen auf die Entropie und damit auf die freie Energie der Stufe. Für gegebene Anzahlen von N^+ , N^- gibt es

$$W = \binom{N}{N^+} \binom{N - N^+}{N^-} = \frac{N!}{N^+! N^-! (N - N^+ - N^-)!} \quad (7.15)$$

verschiedene Konfigurationen. Hiermit lässt sich die Entropie S gemäß

$$S = k_B \log W \quad (7.16)$$

berechnen. Man kann die Stirling-Formel benutzen, um die Fakultäten auszuwerten. Führt man Kink-Dichten gemäß

$$n^+ = N^+/N \quad (7.17)$$

ein, so findet man leicht den extensiven Anteil der Entropie. Für große Systeme bleiben im Limes $N \rightarrow \infty$ nur noch wenige Terme übrig. Terme von der Ordnung $\mathcal{O}(1)$ können vernachlässigt werden. Es ergibt sich schließlich

$$S = k_B N [n^+ \log n^+ + n^- \log n^- + (1 - n^+ - n^-) \log (1 - n^+ - n^-)]. \quad (7.18)$$

Maßgeblich dafür, ob sich im System Stufen ausbilden, ist die freie Energie einer Stufe F , im Folgenden normiert auf die Länge N ,

$$\tilde{w}_l = F/N = w_l + w_k(n^+ + n^-) + TS/N. \quad (7.19)$$

Im thermodynamischen Gleichgewicht gilt nun:

$$\frac{\partial \tilde{w}_l}{\partial n^+} = \frac{\partial \tilde{w}_l}{\partial n^-} = 0. \quad (7.20)$$

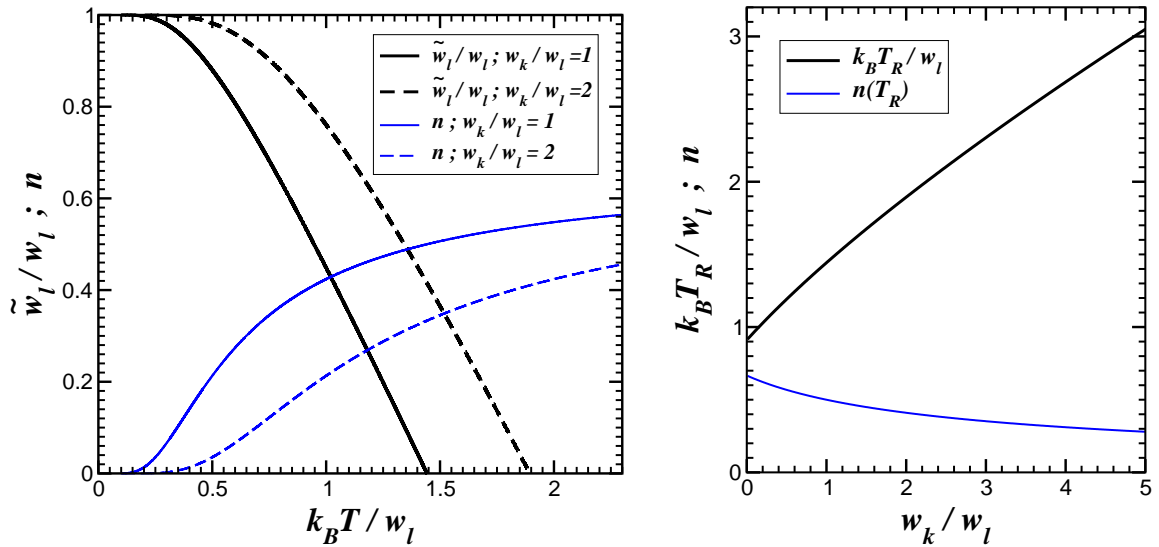


Abbildung 7.3: Rechts: Skalierte freie Energie \tilde{w}_l/w_l einer Stufe in Abhängigkeit von der skalierten Temperatur $k_B T/w_l$. Links: Aufräumungstemperatur $k_B T_R/w_l$ und Kink-Dichte $n(T_R)$ in Abhängigkeit des Asymmetrieparameters w_k/w_l .

Hieraus ergibt sich die Kink-Dichte im Gleichgewicht

$$n \equiv n^+ + n^- = \frac{2 \exp(-w_k/k_B T)}{1 + 2 \exp(-w_k/k_B T)}. \quad (7.21)$$

Setzt man die Gleichgewichtsdichte der Kinks in (7.19) ein, ergibt sich folgende Abhängigkeit von Temperatur und Kink-Energie,

$$\tilde{w}_l(T) = w_l - k_B T \log [1 + 2 \exp(-w_k/k_B T)]. \quad (7.22)$$

Wird \tilde{w}_l negativ, gewinnt das System an freier Energie, wenn es Stufen ausbildet. Die facettierte Oberfläche des Kristalls wird von Stufen durchzogen und die Höhenkorrelation der Oberfläche geht verloren. Die Lösung der Gleichung $\tilde{w}_l(T_R) = 0$ bestimmt die Aufräumungstemperatur dieses Modells. Leider kann die Gleichung

$$0 = w_l - k_B T_R \log [1 + 2 \exp(-w_k/k_B T_R)] \quad (7.23)$$

nicht nach T_R aufgelöst werden, so dass im Allgemeinen die Lösung numerisch erfolgen muss. Im Fall $w_k = w_l$ lässt sich jedoch die Lösung direkt angeben:

$$k_B T_R/w_l = 1/\log 2 \approx 1.4427. \quad (7.24)$$

Dieser Wert liegt in der Größenordnung von dem, was die zweidimensionalen Modelle ASOS und DGSOS liefern.

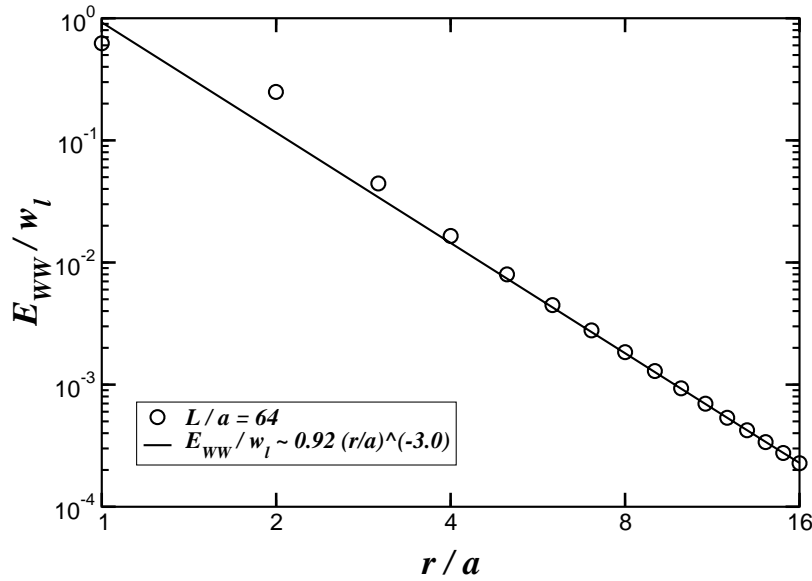


Abbildung 7.4: Wechselwirkungsenergie zweier Kinks aus dem zweidimensionalen Modell gemäß Abschnitt 7.3.

7.4.1 Effektive Parameter aus dem zweidimensionalen Modell

Für unser zweidimensionales Modell ist die Kink-Energie w_k in etwa doppelt so groß wie die Linienenergie w_l , siehe Abschnitt 7.5.2. Beispielfhaft zeigt Abbildung 7.3 die freie Energie einer Stufe sowie die Kink-Dichte in Abhängigkeit von der Temperatur für $w_k/w_l = 1$ und $w_k/w_l = 2$. Als Aufrauungstemperaturen ergeben sich $k_B T_R = 1.44 w_l$ für $w_k/w_l = 1$ und $k_B T_R = 1.89 w_l$ für $w_k/w_l = 2$. Abbildung 7.3 zeigt die Aufrauungstemperatur T_R und die Kink-Dichte $n(T_R)$ in Abhängigkeit des Asymmetrieparameters w_k/w_l . Die Aufrauungstemperatur T_R steigt monoton mit w_k/w_l , die Kink-Dichte an der Übergangstemperatur T_R nimmt dabei ab.

Die elastischen Effekte führen jedoch zu einer zusätzlichen langreichweitigen Wechselwirkung zwischen den Kinks. Die Wechselwirkungsenergie E_{WW} zweier Kinks auf einer sonst geraden Stufe verhält sich für hinreichend große Abstände wie

$$E_{WW} \sim \frac{w_{kk}}{(r/a)^3}. \quad (7.25)$$

Die Konstante w_{kk} legt hierbei die Skala der Wechselwirkungsenergie fest. Abbildung 7.4 zeigt das tatsächliche Verhalten auf einem periodischen Gitter der Länge $L = 64$. Für die Stärke der Kink-Wechselwirkung ergibt sich $w_{kk} \approx 0.9$. Zur Illustration der prinzipiellen Effekte setzen wir als effektive Parameter für das weitere eindimensionale Modell $w_k = 2w_l$ und $w_{kk} = w_l$.

Im folgenden Abschnitt wird nun das eindimensionale Modell um diese Wechselwirkung erweitert.

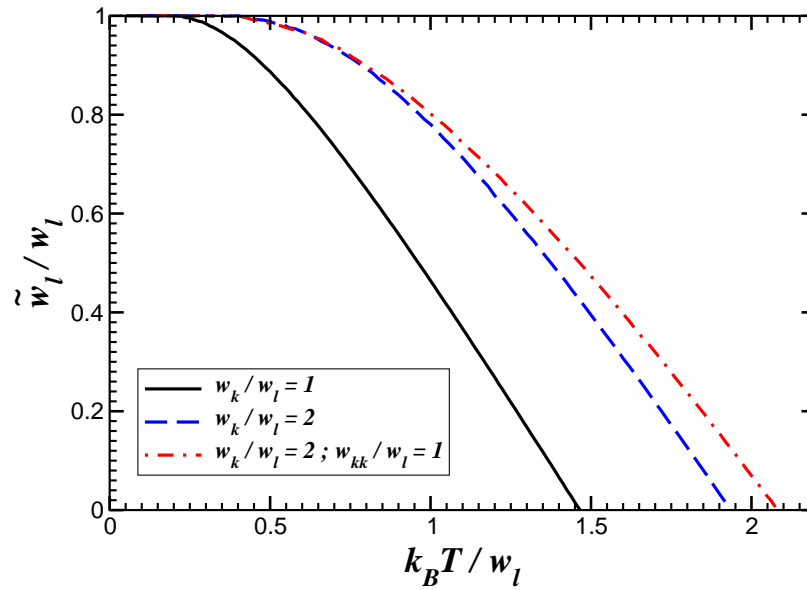


Abbildung 7.5: Skalierte freie Energie \tilde{w}_l/w_l einer Stufe, berechnet durch Monte-Carlo-Simulation, in Abhängigkeit von der skalierten Temperatur $k_B T / w_l$. Der Vergleich mit der Theorie, siehe Abbildung 7.3, zeigt hervorragende Übereinstimmung.

7.4.2 Kink-Wechselwirkung

Unterliegen die Kinks einer langreichweitigen Wechselwirkung, so ist man auf Monte-Carlo-Methoden angewiesen, um die freie Energie einer Stufe zu berechnen.

Die Energie lässt sich hier als

$$E = Nw_l + w_k(N^+ + N^-) + E_{WW} \quad (7.26)$$

schreiben. Die elastische Wechselwirkung führt zu einer $1/r_{ij}^3$ -Wechselwirkung zwischen je zwei Kinks i und j . Die Größe r_{ij} bezeichnet hier den Absolutabstand der Kinks entlang der Stufe. Die auftretende Querverschiebung wird hierbei ignoriert. Damit wird die Wechselwirkung zwischen Kinks eher etwas zu groß abgeschätzt. Die Wechselwirkungsenergie lässt sich nun schreiben als

$$E_{WW} = \sum_{i < j} \frac{w_{kk}}{(r_{ij}/a)^3}, \quad (7.27)$$

wobei der Parameter w_{kk} die Stärke der Wechselwirkung im Vergleich zu den anderen Parametern w_l und w_k angibt.

Die freie Energie lässt sich durch die Zustandssumme ausdrücken

$$F = -k_B T \log Z, \quad (7.28)$$

wobei die Zustandssumme Z durch den Erwartungswert der kanonischen Dichte

$$Z = \langle \exp(-E/k_B T) \rangle \quad (7.29)$$

gegeben ist. Leider eignet sich dieser Zugang nicht dazu, numerisch die freie Energie F zu berechnen, weil die Momente $\langle E^N \rangle$ der Energie in der Entwicklung der Exponentialfunktion für große N entlang des Simulationspfades nur langsam konvergieren. Die Entropie S lässt sich jedoch mit einer Größe in Zusammenhang bringen, die der Simulation zugänglicher ist, der Wärmekapazität $C(T)$:

$$S(T) = \int_{T'=0}^T dT' \frac{C(T')}{T'}, \quad (7.30)$$

wobei sich $C(T)$ aus dem Erwartungswert des ersten und zweiten Moments der Energie zusammensetzen lässt,

$$C(T) = \frac{\langle E^2 \rangle_T - \langle E \rangle_T^2}{k_B T^2}. \quad (7.31)$$

Für dieses System verschwindet C im Limes $T \rightarrow 0$ hinreichend schnell, so dass das Integral konvergiert. Hiermit lässt sich die freie Energie der Stufe durch so genannte thermodynamische Integration bestimmen,

$$F(T) = \langle E \rangle_T - T \int_{T'=0}^T dT' \frac{\langle E^2 \rangle_{T'} - \langle E \rangle_{T'}^2}{k_B T'^3}. \quad (7.32)$$

Trägt man die so gewonnene freie Energie gegenüber der Temperatur auf, siehe Abbildung 7.5, kann man das Ergebnis der Fälle ohne Wechselwirkung mit dem halb-analytischen Ergebnis aus Abbildung 7.3 vergleichen. Mit $k_B T_R = 1.46 w_l$ für $w_k/w_l = 1$ und $k_B T_R = 1.93 w_l$ für $w_k/w_l = 2$ sind die Abweichungen nur unwesentlich. Zu beachten ist hierbei, dass es sich um ein endliches System handelt. Der Fall mit Kink-Wechselwirkung liefert etwa $k_B T_R = 2.08 w_l$ für $w_k/w_l = 2$ und $w_{kk}/w_l = 1$. Man kann erkennen, dass im Tieftemperaturbereich die Wechselwirkung zwischen den Kinks keine Rolle zu spielen scheint und die Selbstenergie das Verhalten der freien Energie bestimmt.

7.4.3 Folgerungen

Es ist festzustellen, dass die Asymmetrie zwischen Kink- und Linienenergie im Verhältnis $w_k/w_l = 2$ die Aufrauungstemperatur der Stufe um etwa 50% gegenüber dem Fall $w_k/w_l = 1$ erhöht. Eine zusätzliche Kink-Wechselwirkung der Stärke $w_{kk}/w_l = 1$ erhöht die Aufrauungstemperatur nur um zusätzliche 8%.

Sollte das hier betrachtete eindimensionale Modell einer Stufe repräsentativ für den tatsächlichen Aufrauungsübergang einer Oberfläche sein, ist davon auszugehen, dass

die Aufrauungstemperatur des zweidimensionalen Modells in der Größenordnung der Übergangstemperatur der Stufe liegt. Da sowohl das ASOS- und das DGSOS-Modell für eine einfache Stufe $w_k/w_l = 1$ liefern, kann man annehmen, dass das zweidimensionale elastische Modell mit $w_k/w_l = 2$ hier einen höheren Wert liefert. Man hat im Vergleich zu diesen Modellen mit einem Anstieg von etwa 50% zu rechnen.

7.5 Aufrauung einer Oberfläche – Ergebnisse und Diskussion

Um eine anschauliche Vorstellung davon zu geben, wie sich das Modell beim Aufrauungsübergang verhält, sind in Abbildung 7.6 drei Systemkonfigurationen für unterschiedliche Temperaturen gezeigt. Es handelt sich im vorliegenden Fall um Simulationen, die ohne Beschränkung der Reichweite mit dem Potential $\Psi_1 = \Psi_{1,\infty}$ vorgenommen wurden. Abbildung 7.6 zeigt die Systeme in Aufsicht, die Höhe gemäß der Kodierung in Graustufen ist jeweils dem Balken am rechten Rand zu entnehmen. Die laterale Ausdehnung der Systeme ist in allen Fällen $L/a = 128$.

Unterhalb der Aufrauungstemperatur $k_B T \approx 4.5w_{el}$ (oberes Bild) sind einzelne räumlich beschränkte Fluktuationen um die mittlere Höhe von $h/a = 100$ zu beobachten. Die Fluktuationen bestehen aus einzelnen Adatomen oder Inseln und den dazu komplementären Vertiefungen auf einer sonst deutlich sichtbaren Facette. Die Variation der Höhe beschränkt sich im Wesentlichen auf ± 1 Lage um die mittlere Höhe.

Mit steigender Temperatur nimmt die Anzahl der Anregungen und ihre räumliche Ausdehnung zu. Bei $k_B T \approx 9w_{el}$ (mittleres Bild) haben die Anregungen eine laterale Ausdehnung von der Ordnung der Systemgröße erreicht. Die Variation der Höhe hat mit etwa ± 2 Lagen ebenfalls zugenommen.

Erhöht man die Temperatur weiter, nimmt die Rauigkeit der Oberfläche dem visuellen Eindruck nach zu, siehe unteres Bild in Abbildung 7.6 bei $k_B T \approx 13w_{el}$. Die laterale Ausdehnung der Fluktuationen ist jedoch auf die Systemgröße beschränkt und kann nicht weiter ansteigen.

7.5.1 Korrelationsfunktion des Höhenfeldes

Als Maß für die Rauigkeit zieht man üblicherweise die Schwankungen der Höhe um einen Mittelwert heran. Der thermische Erwartungswert dieses Schwankungsquadrates ist die Korrelationsfunktion des Höhenfeldes

$$G(r) = \frac{\langle [h(0) - h(r)]^2 \rangle}{a^2}. \quad (7.33)$$

Das makroskopische Verhalten des Systems wird dadurch bestimmt, wie sich die Korrelationsfunktion $G(r)$ für große Abstände r verhält. Unterhalb des Aufrauungsübergangs, das heißt $T < T_R$, sättigt die Korrelationsfunktion für große Abstände und es

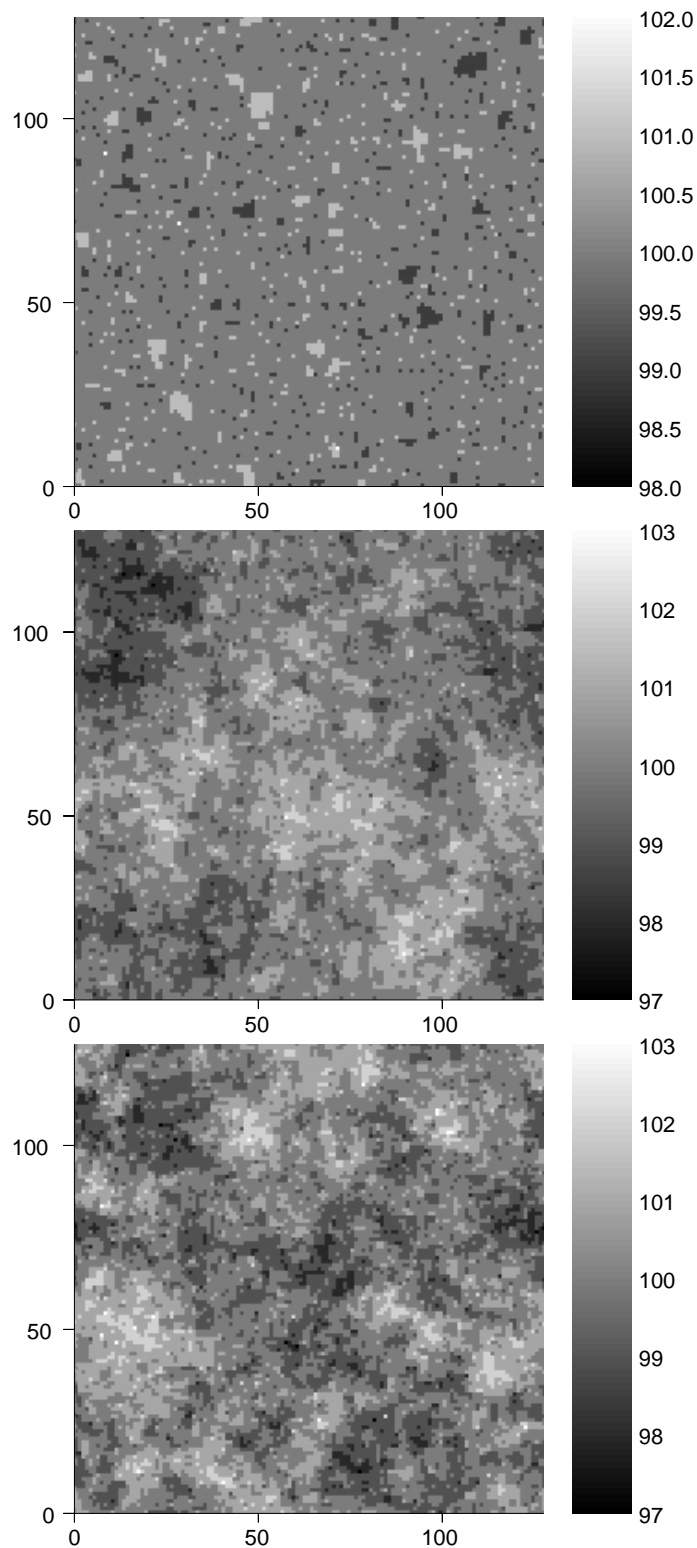


Abbildung 7.6: Aufrauungsübergang einer Oberfläche unter elastischer Wechselwirkung: $T \approx 4.5w_{el}$, $T \approx 9w_{el}$, $T \approx 13w_{el}$ (von oben nach unten), unendliche Reichweite der Wechselwirkung.

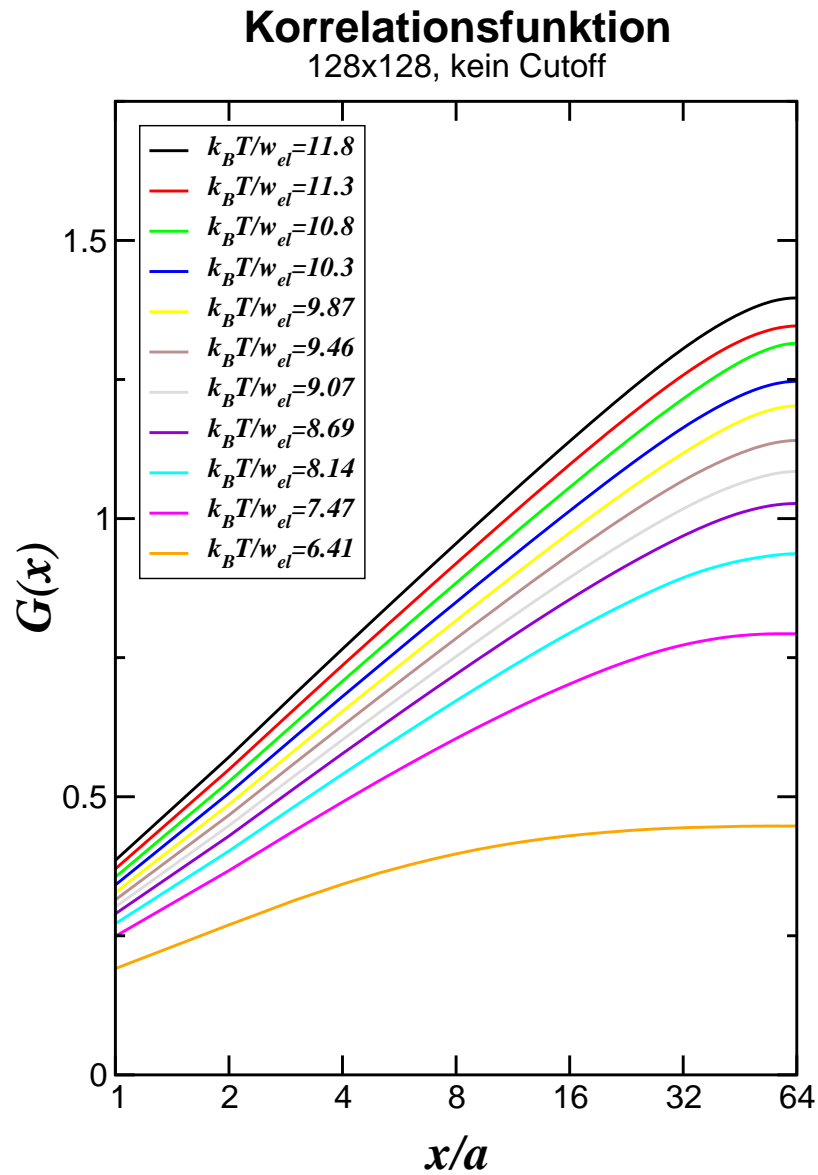


Abbildung 7.7: Korrelationsfunktion des Höhenfeldes der Oberfläche mit elastischer Wechselwirkung unendlicher Reichweite (kein Cutoff). Deutlich zu sehen ist der Effekt endlicher Systemgröße. Die Korrelationsfunktion weicht bei jeder Temperatur vom erwarteten logarithmischen Verhalten ab.

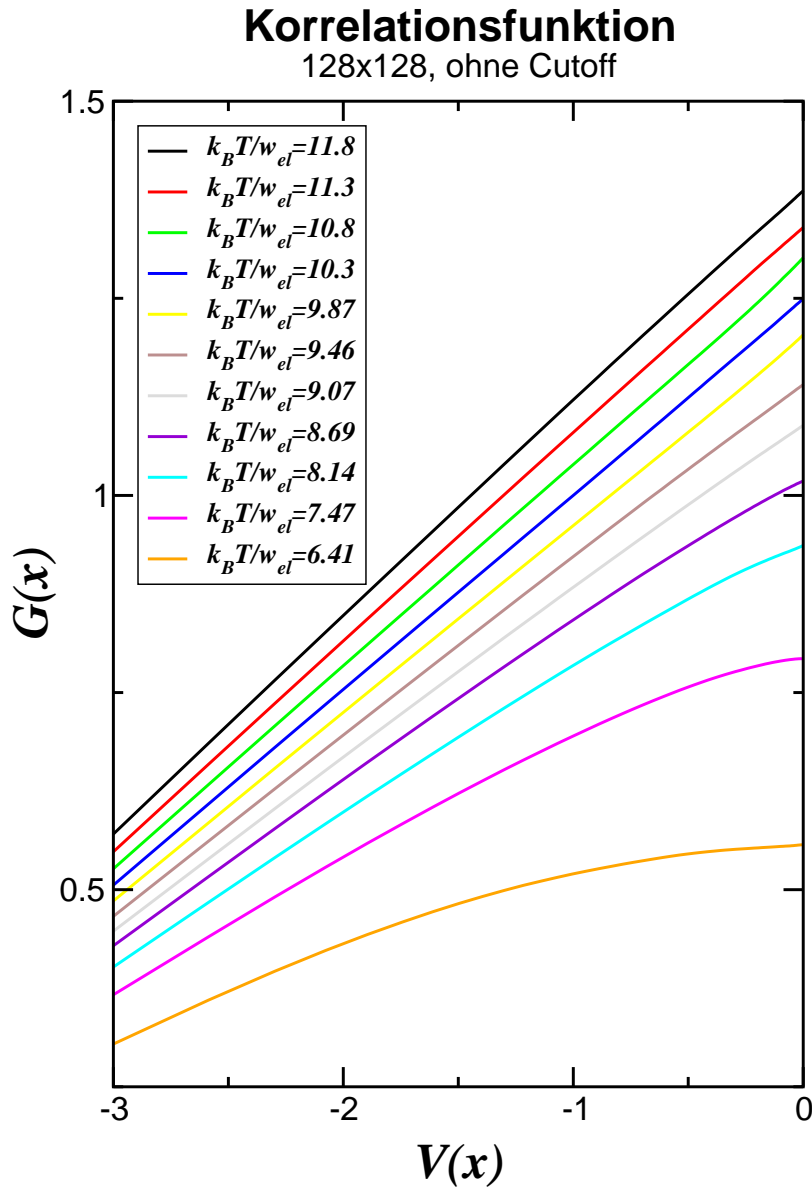


Abbildung 7.8: Korrelationsfunktion des Höhenfeldes der Oberfläche mit elastischer Wechselwirkung unendlicher Reichweite (kein Cutoff). Die Korrelationsfunktion sättigt für kleine Temperaturen und zeigt logarithmisches Verhalten für $T > T_R$. Aus der ersten geraden Linie lässt sich die Schätzung $k_B T_R / w_{el} \approx 9.0$ für die Aufrauungstemperatur der Oberfläche gewinnen.

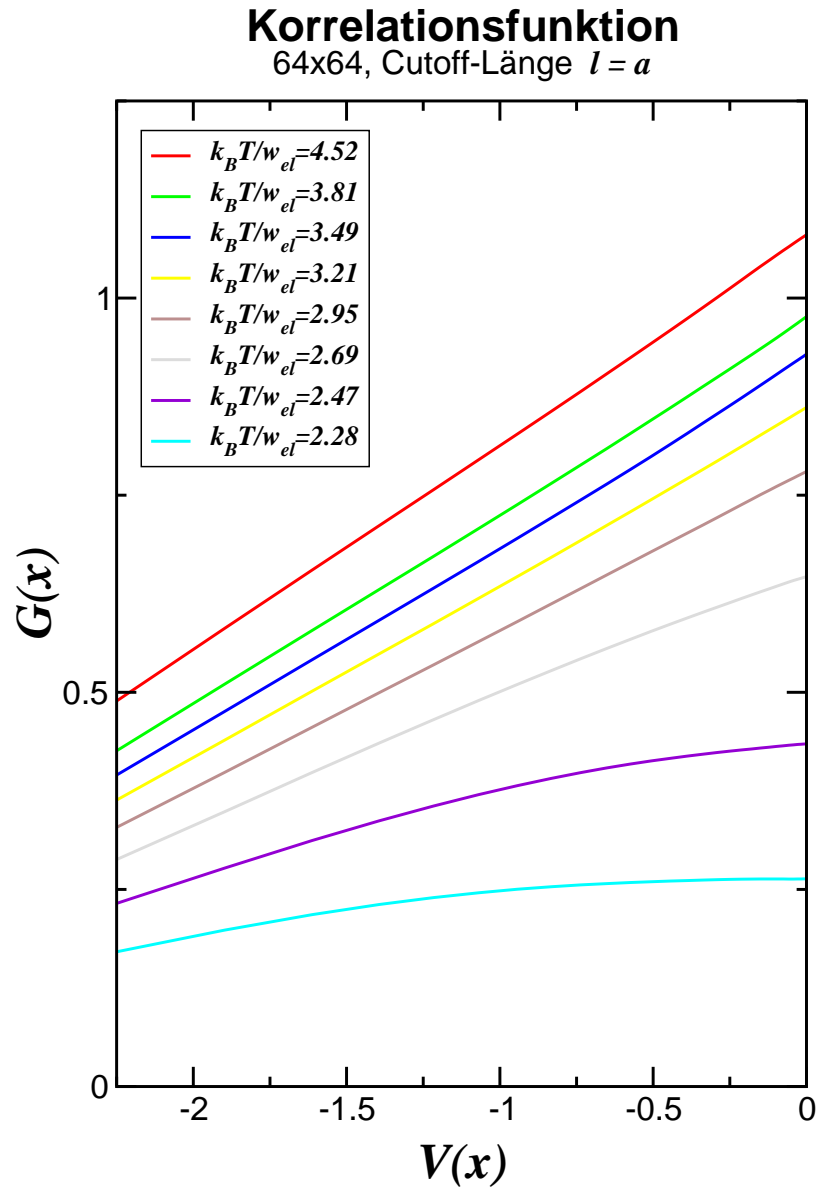


Abbildung 7.9: Korrelationsfunktion des Höhenfeldes der Oberfläche mit elastischer Wechselwirkung für Cutoff $l/a = 1$, das heißt die Wechselwirkung ist auf nächste Nachbarn beschränkt. Aus der ersten geraden Linie gewinnt man $k_B T_R / w_{el} \approx 2.9$ als Schätzwert für die Aufrauungstemperatur.

gilt $G(r \rightarrow \infty) = (w/a)^2$. Die Höhendifferenz ist für große Abstände beschränkt und im Mittel gleich w . Die Größe w ist demnach ein Maß für die makroskopische Dicke der Grenzfläche zwischen dem Kristall und dem darüber liegenden Vakuum. Die Korrelationslänge ξ , bei der die Korrelationsfunktion sättigt, ist endlich. Betrachtet man den Kristall nur auf makroskopischen Skalen (größer als w senkrecht zur Oberfläche und größer als ξ entlang der Oberfläche), so erscheint die Kristalloberfläche glatt. Mit ansteigender Temperatur werden nun ξ und w immer größer, bis bei einer kritischen Temperatur $T = T_R$ die Korrelationslänge ξ (und folglich auch w) divergiert.

Für $T > T_R$ divergiert die Korrelationsfunktion $G(r)$ laut konventioneller Theorie des Aufrauungsübergangs [93] wie

$$G(r) \sim K(T) \ln \frac{r}{a}, \quad (7.34)$$

mit einer Amplitude $K(T)$, die von der Temperatur abhängt. Anhand einer Auftragung $G(r)$ gegen $\ln(r/a)$ ließe sich feststellen, bei welcher Temperatur die Länge ξ divergiert und der Graph zu einer geraden Linie wird.

In einem endlichen System mit periodischen Randbedingungen kann die Korrelationslänge ξ jedoch nicht die Systemgröße L überschreiten. Dabei ist es so, dass nicht nur der Bereich von r eingeschränkt ist und sich die Korrelationsfunktion bis zur maximalen Länge L gemäß Gleichung (7.34) verhält. Vielmehr zeigt die Korrelationsfunktion $G(r)$ auch für $T > T_R$ ein kontinuierliches Sättigungsverhalten, siehe Abbildung 7.7. Es ist nahezu unmöglich, hier den eigentlichen Effekt vom Sättigungsverhalten aufgrund der Systemgröße zu unterscheiden.

Um diesen Effekt endlicher Systemgröße zu umgehen, kann man einen Ansatz verwenden, der in ähnlicher Form von Y. Saito im Zusammenhang mit dem zweidimensionalen Coulomb-Gas [92] verwendet wurde. Um das Argument einfach zu halten, betrachten wir nur Korrelationen entlang der Hauptrichtungen x und y des Gitters und ersetzen r durch $x = r_x$. Als Ausgangspunkt dient die Tatsache, dass $G(x)$ in einem periodischen System ebenfalls eine periodische Funktion sein muss. Für kleine Abstände $x \ll L$ kennen wir das Verhalten, die Korrelationsfunktion $G(r)$ verhält sich logarithmisch. Es ist daher naheliegend, das erwartete Verhalten durch eine L -periodische Funktion zu approximieren und dazu den Logarithmus aus Gleichung (7.34) mithilfe der Fourier-Analyse zu einem „periodischen Logarithmus“ zu machen. Der Weg zu dieser periodischen Funktion $V(x)$ wird im Folgenden konkretisiert.

Um die Singularität bei $\zeta = x/a \rightarrow 0$ zu umgehen, starten wir mit einer Funktion v , die mit

$$v(\zeta) = \ln(\max(\zeta, 1)) \quad (7.35)$$

auf Abständen größer als eine Gittereinheit ein logarithmisches Verhalten zeigt, und der Integral-Fourier-Transformation oder unter Ausnutzung der Symmetrie der Kosinus-Transformation

$$\tilde{v}(k) = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \cos(k\zeta) v(\zeta) d\zeta. \quad (7.36)$$

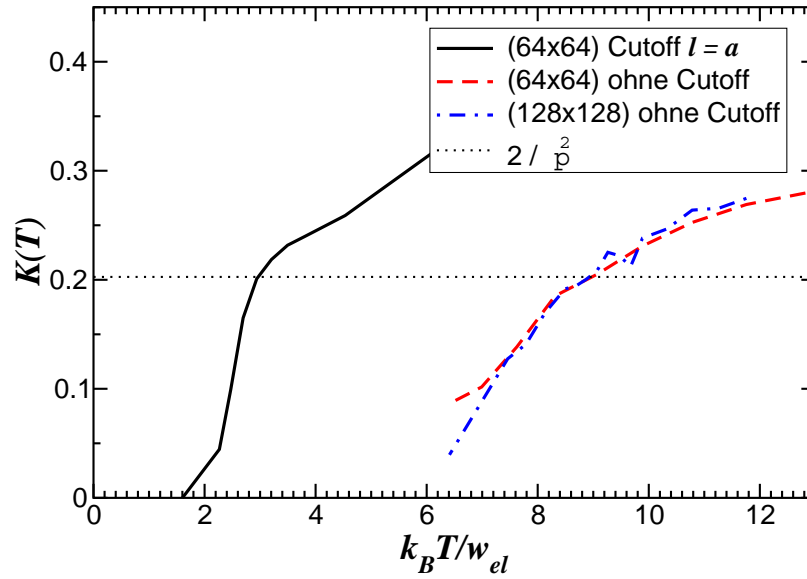


Abbildung 7.10: Steigung $K(T)$ gegen Temperatur T . Ist die konventionelle Aufräuhungstheorie gültig, so muss am Übergang $K(T_R) = 2/\pi^2$ gelten. Unter dieser Annahme ergibt sich $k_B T_R = 9.0 w_{el}$ für das Potential mit unendlicher Reichweite sowie $k_B T_R = 3.0 w_{el}$ für das Potential mit Cutoff-Länge $l = a$.

Mittels dieser Fourier-Komponenten kann man dann über eine Fourier-Reihe die L -periodische Funktion $V_L(x)$

$$V_L(x) = \frac{2\pi a}{L} \sum_{n=1}^{\infty} \tilde{v} \left(\frac{2\pi n a}{L} \right) \cos \left(\frac{2\pi n}{L} x \right) \frac{\sin \left(\frac{2\pi n a}{L} \right)}{\frac{2\pi n a}{L}} \quad (7.37)$$

definieren. Um genau zu sein, wurde hier noch über Längenskalen a gemittelt, die Funktion somit geglättet. Zur Vereinfachung definieren wir noch

$$V(x) = V_L(x) - V_L(L/2) \quad (7.38)$$

und tragen $G(x)$ gegen den „periodischen Logarithmus“ $V(x)$ auf.

Die hieraus resultierende Abbildung 7.8 zeigt die Korrelationsfunktion des Höhenfeldes für das volle Wechselwirkungspotential $\Psi(r)_{1,\infty}$. Bei einer Temperatur von etwa $k_B T \approx 9.0 w_{el}$ wird der Graph zur geraden Linie. Dies zeigt den Aufräuhungsübergang an. Beschränkt man die Wechselwirkung der elastischen Dipol-Ladungen auf nächste Nachbarn, also $l = a$, wird der Graph der Korrelationsfunktion schon bei einer tieferen Temperatur $k_B T \approx 3.0 w_{el}$ gerade, siehe Abbildung 7.9.

Nimmt man die Gültigkeit der klassischen Kosterlitz-Thouless-Theorie des Aufräuhungsübergangs für das hier betrachtete langreichweitige Modell an, so sollte die Steigung $K(T)$ am Übergang den universellen Wert $K(T_R) = 2/\pi^2$ annehmen. Aus der Auftragung dieser Steigung $K(T)$ gegen die Temperatur kann dann ein weiterer Schätzwert für die Aufräuhungstemperatur gewonnen werden, siehe Abbildung 7.10.

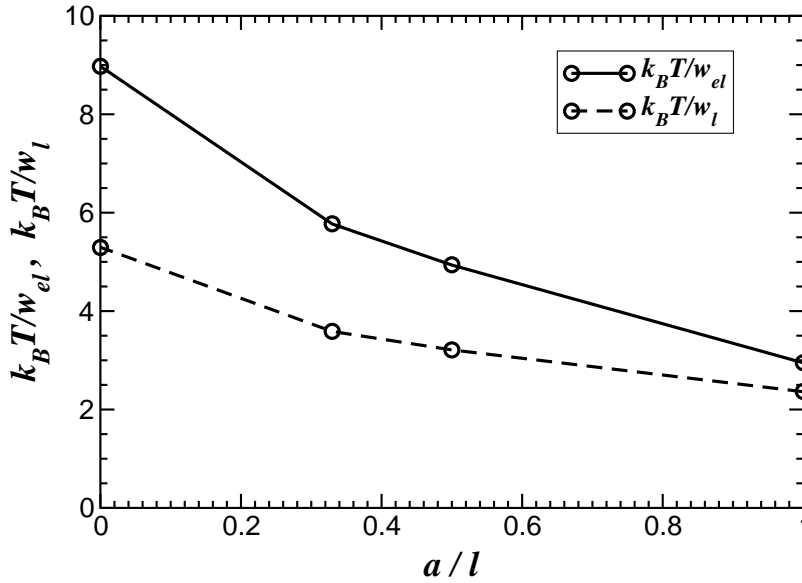


Abbildung 7.11: Skalierte Aufrauungstemperaturen $k_B T/w_{el}$ und $k_B T/w_l$ gegen inverse Cutoff-Länge a/l . Selbst für $l/a = 3$ bleibt die Aufrauungstemperatur $k_B T_R \approx 5.8 w_{el}$ deutlich unter dem Wert für das Potential unendlicher Reichweite. w_l ist die Energie für eine gerade Stufe der Länge a entsprechend dem Potential zur Cutoff-Länge l .

Die auf diese Weise bestimmten Werte für die Aufrauungstemperatur stimmen mit der ersten Schätzung aus Abbildung 7.8 und Abbildung 7.9 überein. Die Übereinstimmung der beiden Werte kann als Indiz dafür gedeutet werden, dass die Kosterlitz-Thouless-Theorie auch in Anwesenheit langreichweitiger Wechselwirkungen gültig bleibt.

Aus den Daten kann geschlossen werden, dass die langreichweitige Wechselwirkung im Vergleich zum Potential mit kurzreichzeitigem Cutoff zu einer drastisch erhöhten Aufrauungstemperatur führt. Die Aufrauungstemperatur variiert hier etwa um einen Faktor 3. Es ist an dieser Stelle hinzuzufügen, dass die Aufrauungstemperatur sich allmählich mit der Cutoff-Länge ändert, siehe Abbildung 7.11. Selbst für $l/a = 3$ bleibt die Aufrauungstemperatur mit $k_B T_R \approx 5.8 w_{el}$ deutlich unter dem Wert für das Potential mit unendlicher Reichweite. Das hier beobachtete Verhalten ist folglich kein Effekt, der nur auf einer Wechselwirkung zwischen übernächsten Nachbarn beruht.

7.5.2 Energieskalen

Man könnte zunächst vermuten, dass sich mit einer größeren Reichweite des Potentials die relevanten Energieskalen ändern. Es zeigt sich jedoch, dass sich die Energieskalen, an die man üblicherweise zunächst denkt, zum Beispiel die Energie einer Stufe oder eines Kinks in einer Stufe, nur geringfügig ändern. Stufen- und Kink-Energie variieren um nicht mehr als 36%.

Die Linienenergie für eine gerade Stufe der Länge a ändert sich von $w_l = 1.3 w_{el}$ bei einem Cutoff $l/a = 1$ auf $1.7 w_{el}$ bei unendlicher Reichweite. Die entsprechenden Kink-Energien steigen von $w_k = 2.8 w_{el}$ auf $3.8 w_{el}$ an. Im Tieftemperaturbereich ist schließlich die Energie eines einzelnen Adatoms auf einer sonst glatten Oberfläche eine wichtige Größe, die unter Variation der Reichweite von $w_a = 8.1 w_{el}$ auf $8.6 w_{el}$ steigt – eine Änderung um nicht mehr als 6%.

Es sollte an dieser Stelle angemerkt werden, dass der Hauptbeitrag zu diesen Energieskalen von relativ kurzreichweitigen Wechselwirkungen herrührt. Für eine Cutoff-Länge $l/a = 3$ bleiben die Stufen- und die Kink-Energie nur etwa 6 – 7% unter dem Wert für die unendliche Reichweite, die Energie eines einzelnen Adatoms weicht um nicht mehr als 0.05% ab. Es handelt sich hier also um Energieskalen mit hauptsächlich lokalem Charakter.

Ausgehend von der Änderung dieser Energieskalen würde man einen gleichartigen Anstieg der Aufrauungstemperatur erwarten. Eine Änderung der Energieskala um 36% kann jedoch nicht einen Anstieg der kritischen Temperatur um etwa einen Faktor 3 erklären. Skaliert man die Aufrauungstemperatur nicht durch w_{el} sondern durch die Stufenenergie – die Energieskala mit der stärksten Variation – bleibt immer noch ein unerklärter Anstieg um etwa 200% übrig, siehe Abbildung 7.11.

Ausgehend von einem ungeordneten Zustand hoher Temperatur lässt sich jedoch, wie im Folgenden gezeigt wird, eine Energieskala berechnen, die zu einem größeren Anstieg der Aufrauungstemperatur Anlass geben könnte. Nehmen wir für einen Moment an, dass die Verteilung der Ladungen oberhalb der Aufrauungstemperatur homogen ist. Dann steht die Energie E_D einer zusätzlichen Dipol-Ladung in diesem homogenen Hintergrund von Ladungen in Beziehung zu dem zweidimensionalen Oberflächenintegral

$$E_D \sim \int d^2r \Psi(r). \quad (7.39)$$

Die oben diskutierten lokalen Energieskalen hängen im Gegensatz hierzu von im wesentlichen eindimensionalen Ladungsverteilungen ab. Natürlich muss das Integral durch eine diskrete Summe ersetzt werden, wenn der Ausdruck für das Modell eine Bedeutung bekommen soll.

Während sich die Linienenergie beim Wechsel des Potentials von $\Psi_{1,1}$ zu $\Psi_{1,\infty}$ um nur etwa 30% ändert, zeigt die zweidimensionale Summe im Sinne von Gleichung (7.39) einen Anstieg um einen Faktor ~ 2 .

Nimmt man an, dass die Skala der Aufrauungstemperatur durch Gleichung (7.39) gegeben ist, so sind die Korrekturen zum asymptotischen Verhalten ($l/a \rightarrow \infty$) von der Ordnung a/l für $l \gg a$. Wertet man im Sinne einer Abschätzung das Integral (7.39) aus, so ergibt sich ein einfaches $k_B T_R / w_{el} \sim 1 - 2a/3l$ Gesetz für die Abhängigkeit vom Cutoff für das Potential $\Psi_{1,l}$.

Entscheidend ist, dass für niedrige Temperaturen der Hauptteil der Energiebeiträge lokal ist, weil die Dipol-Ladungen entlang wohlseparierter Stufen lokalisiert sind. Bei einer rauen Oberfläche macht dagegen das Konzept einer Stufe keinen Sinn

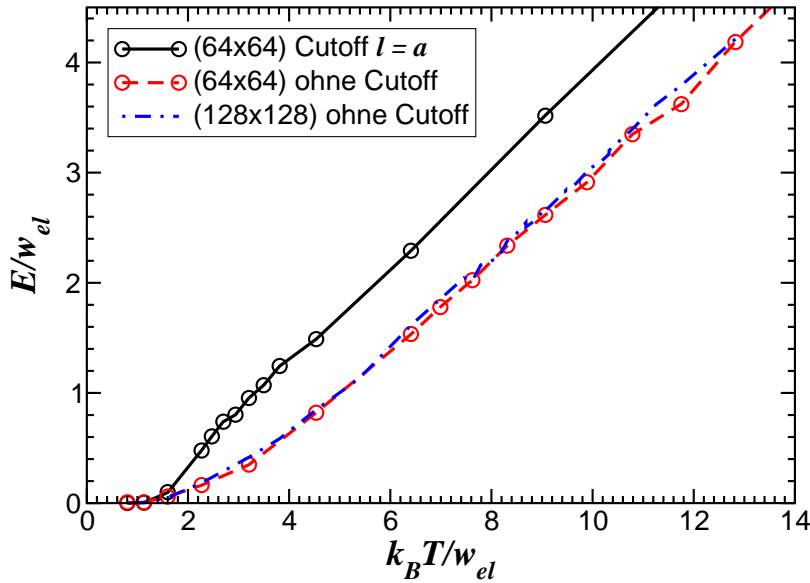


Abbildung 7.12: Mittlere Energie pro Gitterplatz E/w_{el} gegen Temperatur $k_B T/w_{el}$. Die mittlere Energie für die in ihrer Reichweite limitierte Wechselwirkung ist strikt größer als im langreichweitigen Fall.

mehr. Man kann annehmen, dass die Dipol-Ladungen vielmehr gleichförmig über die gesamte Ebene verteilt sind, was die effektive Dimensionalität der tatsächlichen Wechselwirkungsintegrale ganz entscheidend ändert. Deshalb sind Größen wie Kink- und Linienenergie für den Aufräuungsübergang nicht mehr repräsentativ, sobald eine hinreichend starke langreichweitige Wechselwirkung hinzukommt. Kapitel 7.5.5 beschäftigt sich genauer mit der Frage, wie stark eine elastische Stufenwechselwirkung gegenüber einer lokalen Linienenergie sein muss um die Aufräuungstemperatur merklich zu beeinflussen.

7.5.3 Mittlere Energie

Vergleicht man die mittlere Energie E eines Systems mit und ohne Beschränkung der Reichweite der Wechselwirkung, so stellt man fest, dass der Graph für die uneingeschränkte Reichweite immer unterhalb des Graphen für das System mit Cutoff verläuft, siehe Abbildung 7.12. Für hohe Temperaturen skaliert die mittlere Energie E linear mit der Temperatur T , woraus sich schließen lässt, dass die Wärmekapazität gegen eine Konstante läuft.

Die Reichweite der Wechselwirkung des Potentials beeinflusst nur das Verhalten unterhalb der Aufräuungstemperatur. Oberhalb des Aufräuungsübergangs sind alle Details in einem Parameter zusammengefasst, der Aufräuungstemperatur T_R . Dementsprechend fallen die skalierten Graphen $E/k_B T_R$ gegen T/T_R für $T/T_R > 1$ aufeinander, siehe Abbildung 7.13.

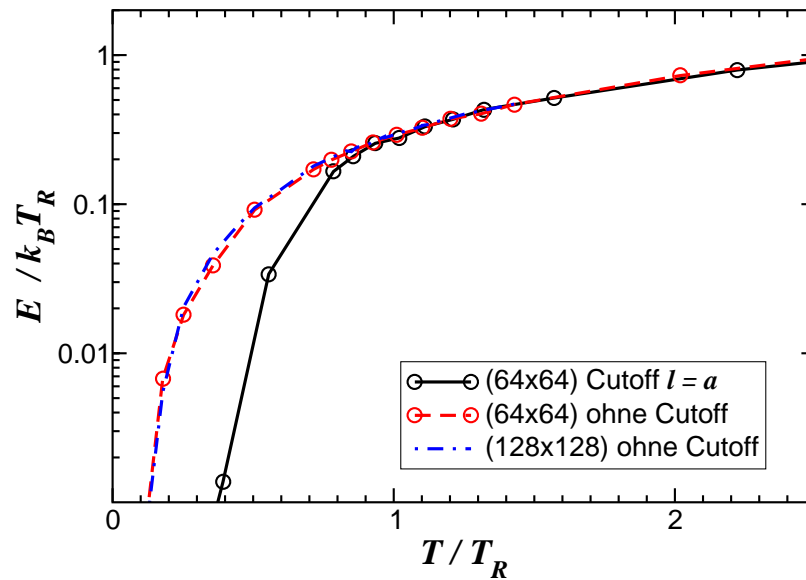


Abbildung 7.13: Skalierte mittlere Energie pro Gitterplatz $E/k_B T_R$ gegen skalierte Temperatur T/T_R . Oberhalb des Aufräuhungsübergangs $T/T_R \geq 1$ fallen die skalierten Daten auf ein und denselben Graphen.

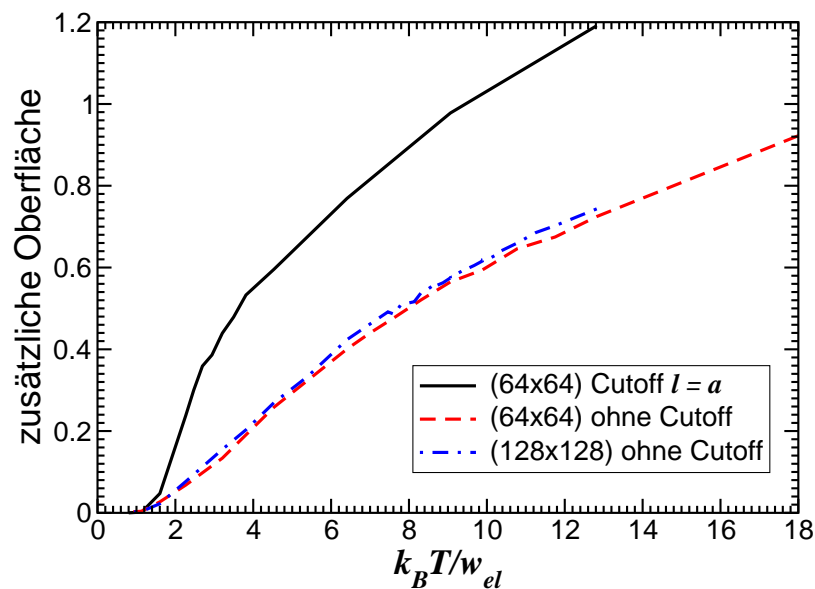


Abbildung 7.14: Zusätzlich generierte Oberfläche, d. h. die Anzahl der gebrochenen Bindungen pro Gitterplatz, gegen Temperatur $k_B T / w_{el}$. Im langreichweitigen Fall treten weniger Oberflächendefekte auf.

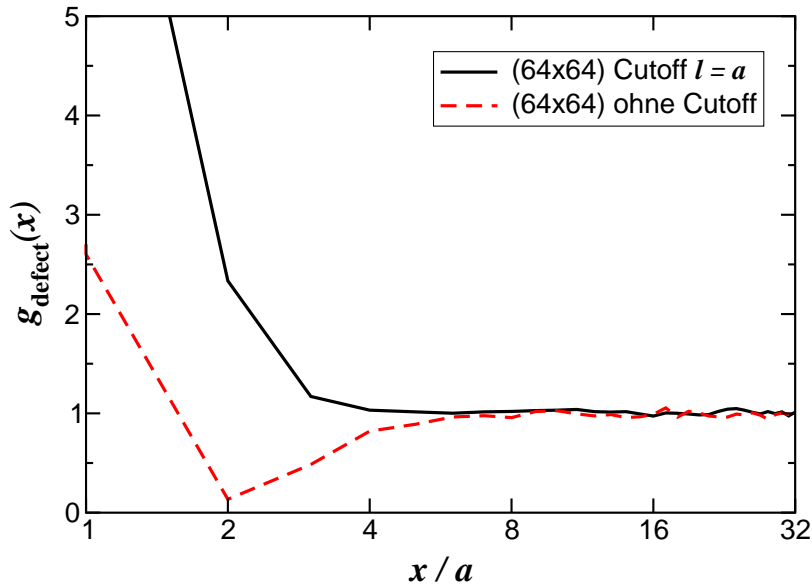


Abbildung 7.15: Korrelation der Defekte bei $k_B T / w_{el} = 0.5$ für Cutoff-Länge $l = a$ und für unendliche Reichweite. Die langreichweitige Wechselwirkung verursacht eine ausgeprägtere Abstoßungslücke (hier bei $x/a = 2$). Diese bedeutet, dass Defekte es vorziehen getrennt zu sein. Die Anti-Korrelation ist verantwortlich für eine starke Abnahme der Entropie des Systems.

Die geringere mittlere Energie des Systems mit langreichweitiger Wechselwirkung korrespondiert mit einer geringeren Anzahl gebrochener Bindungen, siehe Abbildung 7.14. Die Anzahl der Abweichungen von der glatten Facette oder die Stufenlänge ist kleiner im Vergleich zum Wechselwirkungspotential mit kurzer Reichweite.

7.5.4 Korrelation von Defekten

Beschränkt man das Höhenprofil der Oberfläche künstlich auf eine Variation von ± 1 Lage um den Mittelwert 0, so kann man von einem Defekt sprechen, wenn die Höhe von 0 abweicht. Unter dieser Voraussetzung lassen sich Korrelationen zwischen den Defekten analysieren. Die im Folgenden betrachtete Korrelationsfunktion ist gegeben durch

$$g_{\text{defect}}(r) = \frac{\langle [h^2(\mathbf{r}') - h^2(\mathbf{r}' + \mathbf{r})]^2 \rangle_{\mathbf{r}'}}{\langle h^2(\mathbf{r}') \rangle_{\mathbf{r}'}^2}. \quad (7.40)$$

Auf diese Weise skaliert läuft $g_{\text{defect}}(r)$ für große r gegen 1. Für tiefe Temperaturen fällt aufgrund der Repulsion zwischen den Defekten der Graph für mittlere Distanzen unter den Wert 1 ab, und endet bei einem Wert sehr viel größer als 1 für den Abstand $r/a = 1$, da der Kontakt zwischen Defekten aufgrund der eingesparten Linien- oder Oberflächenenergie bevorzugt wird. Nimmt die Temperatur zu, so wird die Abstoßungslücke immer flacher und verschwindet schließlich.

Abbildung 7.15 zeigt die Defektkorrelationsfunktion sowohl für Cutoff-Länge $l/a = 1$ als auch für langreichweitige Wechselwirkung. Während bei der langreichweitigen Wechselwirkung eine ausgeprägte Lücke vorhanden ist, ist sie im Falle $l/a = 1$ schon verschwunden. Die ausgeprägte Lücke im Falle des Potentials mit unendlicher Reichweite bedeutet, dass einzelne Defekte oder Inseln vermeiden, in der Nähe von anderen Defekten zu sein. Das vermindert die Anzahl der bevorzugten Konfigurationen und reduziert somit den Entropiebeitrag zur freien Energie bei gegebener Defektdichte n .

Für die folgende Argumentation werden wir annehmen, dass der Haupteffekt eine Reduzierung der Entropie um einen Faktor $\alpha < 1$ ist, wohingegen die mittlere Energie für eine gegebene Defektdichte n unverändert bleibt. In diesem recht einfachen Bild können wir die freie Energie wie

$$F_\alpha = E(n) - T\alpha S(n)$$

schreiben, wobei n von der Temperatur T abhängt und durch die Bedingung $\partial F/\partial n = 0$ festgelegt ist. In diesem Bild hat die freie Energie $F_\alpha(T)$ des Systems mit reduzierter Entropie bei der Temperatur T die gleichen Eigenschaften wie das Originalsystem bei einer tieferen Temperatur αT . Hat das Originalsystem eine Aufrauungstemperatur T_R , so wird im System mit reduzierter Entropie die Aufrauungstemperatur \tilde{T}_R auf den Wert $\tilde{T}_R = T_R/\alpha$ steigen.

Aus der Bestimmungsgleichung für die Defektdichte

$$E'(n)/S'(n) = \alpha T$$

folgt aber auch, dass n nur eine Funktion von $n = n(\alpha T)$ sein kann. Nimmt man zusätzlich an, dass die Defektdichte n eine mit der Temperatur zunehmende Funktion ist, so ist sofort klar, dass die Defektdichte $n(\alpha T)$ für das System mit reduzierter Entropie geringer ist als die Defektdichte $n(T)$ für das Ursprungssystem. Da die mittlere Energie des Systems aller Wahrscheinlichkeit nach mit der Defektdichte zunimmt, ist auch hier beim System mit reduzierter Entropie mit einer Abnahme zu rechnen. Die hier abgeleiteten Aussagen stimmen mit den gemachten Beobachtungen für die mittlere Energie, siehe Abbildung 7.12, und die Anzahl der gebrochenen Bindungen als Maß für die Anzahl von Defekten, siehe Abbildung 7.14, qualitativ überein.

7.5.5 Linienenergie vs. Stufenwechselwirkung

Wie schon im Kapitel 7.3 angedeutet, kann das Verhältnis von Linienenergie w_l und Stärke der elastischen Stufenwechselwirkung, hier charakterisiert durch w_{el} , durch die Wahl von p_{\max} in Gleichung (7.11) variiert werden. Setzt man p_{\max} auf einen hohen Wert, so wird die Selbstwechselwirkung der Dipol-Ladungen immer bedeutsamer und die langreichweitigen Beiträge verlieren relativ dazu an Gewicht. Die Linienenergie nimmt zu, während die Amplitude der Stufen-Wechselwirkung gleich bleibt. Aufgrund des diskreten Charakters (Summation über diskrete Gitterplätze) wird das Modell im Grenzfall $p_{\max} \rightarrow \infty$ rein lokal.

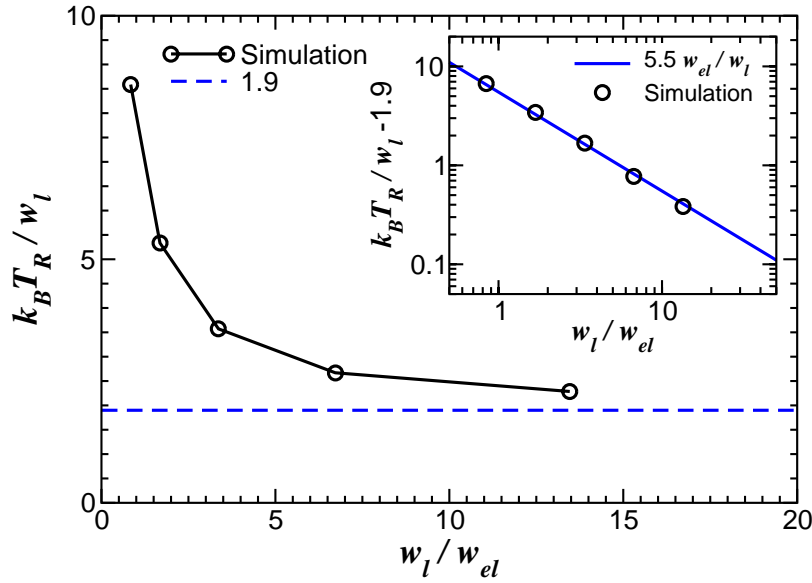


Abbildung 7.16: Aufrauungstemperatur skaliert durch die Linienenergie $k_B T_R / w_l$ gegen gegen Verhältnis von Linienenergie zur elastischen Wechselwirkungsstärke w_l / w_{el} . Die skalierte Aufrauungstemperatur nimmt mit steigender Linienenergie ab, das Modell bekommt einen zunehmend lokalen Charakter. Der Ausschnitt zeigt auf logarithmischer Skala die Abweichungen der skalierten Aufrauungstemperatur von der Asymptotik.

Im Vergleich zu rein lokalen Modellen kann die Linienenergie w_l als eine Art effektiver Kopplungskonstante J_{eff} (siehe Gleichung (7.9)) angesehen werden. In solchen rein lokalen Modellen ist die Aufrauungstemperatur proportional zur einzigen Energieskala und es gilt $k_B T_R \sim J$.

Untersucht man folglich den Einfluss der Größe w_l / w_{el} auf die skalierte Aufrauungstemperatur $k_B T_R / w_l$, so zeigt sich das Ausmaß des Einflusses langreichweitiger elastischer Effekte. Man kann aus dieser Abhängigkeit ableiten, ob langreichweitige elastische Effekte wichtig sind oder ob das Modell effektiv durch ein lokales Modell mit einer effektiven Kopplungskonstante $J_{\text{eff}} \sim w_l$ beschrieben werden kann.

Die Ergebnisse für $p_{\text{max}} = 0.336, 1, 6.39, 17.1$ und 38.7 bei unendlicher Reichweite des Potentials werden in Abbildung 7.16 gezeigt. Die Wahl von p_{max} entspricht dabei jeweils einer Verdopplung der Linienenergie w_l bei identischem w_{el} . Für große w_l / w_{el} sollte der Graph sich dem lokalen Grenzfall annähern.

Umgeht man mit Hilfe des Potentials $\Psi_{1,0}$ die numerisch problematische Grenzwertbildung $p_{\text{max}} \rightarrow \infty$, so erhält man als Ergebnis für die skalierte Aufrauungstemperatur $k_B T_R / w_l \approx 2.1$. Extrahiert man jedoch aus dem Skalenverhalten der Messdaten einen Grenzwert, so kommt man zu einem Wert von $k_B T_R / w_l \approx 1.9$. Dieser Wert weicht um etwa 10% von dem mit Hilfe der Simulation ermittelten ab, er ist aber der konsistentere von beiden. An dieser Stelle ist anzumerken, dass der Wert der

Aufrauungstemperatur im lokalen Limes durchaus die Erwartungen aus dem eindimensionalen Modell mit $w_k/w_1 = 2$, siehe Abschnitt 7.4.3, erfüllt. Gegenüber einem ASOS- oder DGSOS-Modell ist die Aufrauungstemperatur um ca. 50% erhöht. Die Abweichungen aufgrund langreichweitiger elastischer Effekte im Bereich $w_1/w_{el} \lesssim 5$ jedoch werden im Rahmen der Kink-Wechselwirkung des Stufenmodells nicht einmal ansatzweise wiedergegeben.

Der Ausschnitt in Abbildung 7.16 legt nahe, dass sich die Korrekturen zum asymptotischen Ergebnis wie

$$(k_B T_R/w_1 - 1.9) \sim 5.5 \left(\frac{w_1}{w_{el}} \right)^{-1} \quad (7.41)$$

verhalten. Der Schnittpunkt der beiden Asymptotiken liegt in etwa bei $w_1/w_{el} \approx 3$. Ist die Linienenergie viel größer als die Amplitude der Stufen-Wechselwirkung, so kann der Einfluss langreichweitiger Effekte im Hinblick auf die Frage der Aufrauungstemperaturen vernachlässigt werden. Ist jedoch w_1 kleiner als die Stärke der elastischen Stufenwechselwirkung, so wird die langreichweitige Wechselwirkung wichtig und die skalierte Aufrauungstemperatur $k_B T_R/w_1$ steigt dramatisch an.

Akzeptiert man die Rolle des Verhältnisses w_1/w_{el} als Indikator, so stellt sich die Frage, ob diese Größe auch experimentell zugänglich ist, ob mit ihrer Hilfe für reale Systeme eine Aussage getroffen werden kann, oder ob die hier gemachten Aussagen rein theoretischer Natur sind. Es zeigt sich, dass die Größe w_1/w_{el} dem Experiment zugänglich ist. Ebenfalls lassen sich w_1 und w_{el} auf Basis von Computerrechnungen ermitteln.

Üblicherweise ist die nackte Linien- oder Stufenenergie β^0 ohne Wechselwirkung in eV/Å gegeben [95, 96]. Diese Größe lässt sich mit dem hier verwendeten w_1 durch $w_1 = \beta^0 a$ in Beziehung setzen. Die Stärke der elastischen Stufen-Wechselwirkung kann aus der Verteilung der Stufenabstände bei vizinalen Oberflächen, *Terrace-Width-Distribution* (TWD) genannt, extrahiert werden [97].

Viele Autoren nehmen eine elastische Stufen-Wechselwirkung pro Länge der Form A/d^2 an und präsentieren als Ergebnis Werte für den Koeffizienten A in eV Å. Ruft man sich Gleichung (7.14) in Erinnerung, ist der Zusammenhang zwischen w_{el} und A durch die Relation $8w_{el} = A/a$ gegeben. Fügt man diese Teilergebnisse zusammen, ergibt sich

$$w_1/w_{el} \sim 8\beta^0 a^2/A.$$

Um dem Leser eine Idee zu geben, welche Größenordnung das hier betrachtete Verhältnis w_1/w_{el} annehmen kann, setzen wir beispielhaft Ergebnisse für eine Si(111)-Oberfläche ein, welche auf Basis einer Rechnung mit empirischen Potentialen entstanden sind. Referenz [95] deutet darauf hin, dass β^0 von der Größenordnung $\beta^0 = 0.2 \text{ eV/Å}$ ist. Aus der gleichen Quelle ergibt sich ein Wert von der Größenordnung $A = 0.2 \text{ eV Å}$ für die elastische Wechselwirkungsstärke A . Mit einem Gitterparameter von etwa $a \sim 5 \text{ Å}$ ist das Verhältnis der beiden Energieskalen dann von der

Ordnung $w_1/w_{el} \sim 2 \times 10^2$. Andererseits finden sich Werte für gewisse Stufenkonfigurationen auf Si(001), die darauf hindeuten, dass ein Verhältnis der Größenordnung $w_1/w_{el} \sim 2$ möglich ist [58]. Diese Werte sind zumindest fragwürdig, da komplizierte Effekte wie mögliche Formen der Oberflächenrekonstruktion einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss haben. Trotzdem zeigt das Ergebnis, dass der Einfluss langreichweitiger Effekte elastischen Ursprungs für bestimmte Oberflächenorientierungen nicht vernachlässigt werden kann.

7.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden zunächst wesentliche Resultate aus Kapitel 5 zusammengefasst, um auf dieser Basis das im weiteren Verlauf verwendete *Solid-On-Solid*-Modell mit langreichweitiger elastischer Wechselwirkung zwischen Oberflächendefekten zu präzisieren.

Um eine gewisse Vorstellung von den zu erwartenden Effekten zu bekommen, wurde der Aufrauungsübergang zunächst anhand des Verhaltens der freien Energie einer Stufe studiert. Dazu wurden aus dem zweidimensionalen Modell effektive Parameter für das Stufenmodell gewonnen. Ausgehend vom eindimensionalen Modell ist damit zu rechnen, dass die Aufrauungstemperatur des hier betrachteten zweidimensionalen Modells im Vergleich zum ASOS und DGSOS um etwa 50% höher ausfällt. Der Einfluss einer langreichweitigen Kink-Wechselwirkung ist im eindimensionalen Modell jedoch von untergeordneter Bedeutung.

Im zweidimensionalen Modell zeigt sich jedoch, dass Korrelationen zwischen Oberflächendefekten abhängig von der Reichweite der elastischen Wechselwirkung zu einer stark erhöhten Aufrauungstemperatur führen können. Dieser Effekt entsteht hauptsächlich durch eine deutliche Reduktion der Entropie. Da die Oberflächendefekte eine räumliche Trennung von anderen Defekten vorziehen, wird die Anzahl von bevorzugten Konfigurationen und damit der Entropiebeitrag zur freien Energie deutlich verringert. Das Resultat ist ein starker Anstieg der Aufrauungstemperatur.

Zudem wurde der Frage nachgegangen, wie stark der langreichweitige Anteil der Wechselwirkung sein muss, um einen merklichen Effekt im Vergleich zum lokalen Grenzfall des Modells zu bewirken. Hierzu wurde der Selbstenergiebeitrag der Wechselwirkung variiert, welcher das Verhältnis von Linienenergie zur Amplitude der elastischen Stufen-Wechselwirkung ändert. Für die Abhängigkeit der Aufrauungstemperatur von diesem Verhältnis konnte ein Skalengesetz, Gleichung (7.41), gefunden werden. Während sich die Voraussage des eindimensionalen Stufenmodells im Limes schwacher Stufenabstoßung als richtig erweist, versagt das eindimensionale Modell in der Vorhersage des Einflusses langreichweitiger elastischer Effekte. Zeigt das eindimensionale Modell einen relativ mageren Anstieg um 8% aufgrund von elastischer Wechselwirkung, so ergibt sich im zweidimensionalen Modell eine Zunahme um etwa einen Faktor 3. Der Grund hierfür liegt in der Dimensionalität: Während im Stufenmodell eine Wechselwirkung nur entlang einer Linie, der Stufe, stattfinden kann,

erstreckt sich die Wechselwirkung im zweidimensionalen Modell über die ganze Ebene. Am Aufrauungsübergang werden Wechselwirkungen zwischen verschiedenen Stufen und den darauf befindlichen Defekten wichtig.

Die Simulationen legen nahe, dass die Kosterlitz-Thouless-Theorie des Aufrauungsübergangs gültig bleibt. Um jedoch das kritische Verhalten der Korrelationslänge in der Nähe des Übergangs zu verfolgen, sind Systemgrößen notwendig, die mit mehr als $10^6 \times 10^6$ Gitterplätzen weit jenseits des derzeit Realisierbaren liegen. Eine strikter Nachweis ist deshalb mit dieser Art von Monte-Carlo-Simulation nicht möglich.

Kapitel 8

Ausblick

Ziel dieses Kapitels ist es aufzuzeigen, wozu das in Kapitel 5 entwickelte Modell in der Lage ist. Haben wir es in den Kapiteln 4 und 7 mit recht eingeschränkten Szenarien zu tun gehabt, so liefert das Modell die Möglichkeit, das Zusammenspiel von elastischen Effekten homoepitaktischer und heteroepitaktischer Natur genauer zu studieren.

8.1 Grinfeld-Instabilität

Im Gegensatz zu einer homoepitaktischen Adsorbatschicht wird eine kohärente heteroepitaktische Schicht im Allgemeinen einen Misfit gegenüber dem Substrat, das heißt einen vom Substrat verschiedenen Gitterparameter aufweisen. Dieser Misfit sorgt dafür, dass ein glatter, unendlich ausgedehnter Adsorbatfilm in lateraler Richtung gedehnt oder gestaucht wird. Man kann sich den Adsorbatfilm als festen Körper vorstellen, der durch im Unendlichen angreifende Kräfte gestaucht wird und der dann kohärent mit dem Substrat in Kontakt gebracht wird. Ist die Adsorbatschicht dünn gegenüber der Dicke des Substrats, so steckt alle elastische Energie in der Adsorbatschicht. Das Substrat gibt nur die laterale Stauchung vor und bleibt unverändert.

Betrachtet man den heteroepitaktischen Adsorbatfilm als elastischen Körper unter lateraler und nicht hydrostatischer Belastung, so unterliegt dieser der Grinfeld-

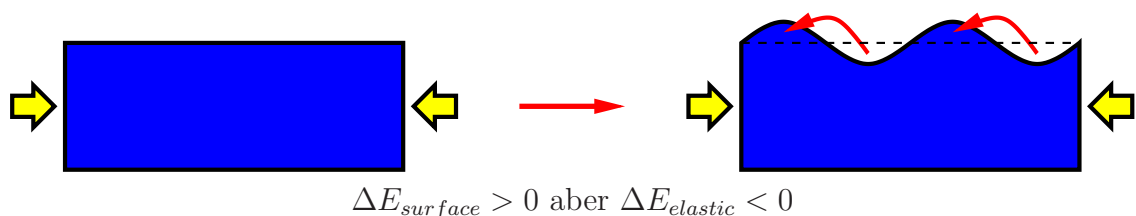


Abbildung 8.1: Das Prinzip der Grinfeld-Instabilität. Durch Umordnung von Material gewinnt das System elastische Energie und muss dafür eine höhere Oberflächenenergie in Kauf nehmen.

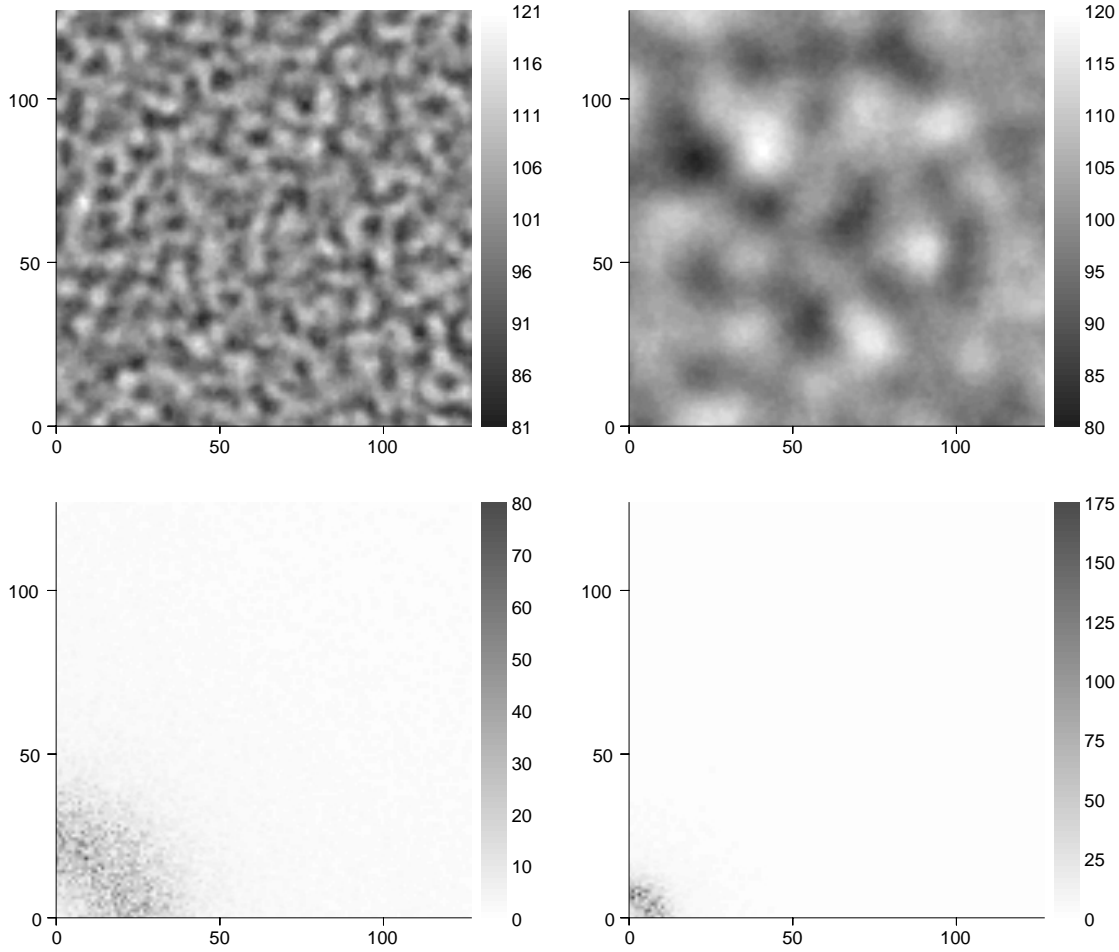


Abbildung 8.2: Simulation unter Evaporations-Adsorptions-Kinetik, Adsorbatfilm von 100 Lagen Dicke. Oben die Oberflächenstruktur, unten die Fourier-Transformierte. Durch Wahl der Systemparameter ist k_c auf der linken Seite doppelt so groß wie auf der rechten.

Instabilität [54, 55], siehe Abbildung 8.1. Gibt man dem unter lateraler Spannung stehenden Körper die Gelegenheit, seine Form durch Materialumverteilung zu verändern, ist die Oberfläche instabil gegenüber welligen Verformungen. Diese keineswegs elastischen Verformungen führen zu zusätzlicher Oberfläche, sind aber zugleich mit einer Entspannung des Materials verbunden, welche die elastische Verzerrungsenergie vermindert. Da der Zuwachs an Oberflächenenergie sich mit dem Wellenvektor \mathbf{k} , der die Störung charakterisiert, wie k^2 verhält, der Gewinn an elastischer Energie sich aber wie $|k|$ verhält, sorgt die Oberflächenenergie dafür, dass alle kurzwelligen Moden mit Wellenvektor $k > k_c$ stabil sind. Langwellige Moden mit $0 < k < k_c$ sind instabil. Sind die Amplituden der Oberflächenenergie γ und des elastischen Energiebeitrags α gegeben, lässt sich das chemische Potential einer Oberflächenmode h_k in der Form

$$\mu_k = (\gamma k^2 - \alpha |k|) h_k$$

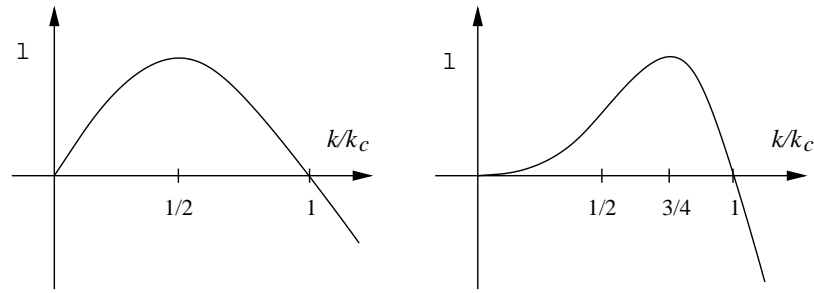


Abbildung 8.3: Skizze zum Spektrum der Grinfeld-Instabilität. Linke Seite für das nicht erhaltene Feld, siehe Gleichung (8.1). Rechte Seite für den Fall der Oberflächendiffusion, siehe Gleichung (8.2).

schreiben. Der kritische Wellenvektor k_c ist dann durch

$$k_c \sim \frac{\alpha}{\gamma}$$

gegeben.

Den höchsten Energiegewinn liefern die Moden um $k = k_c/2$. Gibt es keine Einschränkungen bei dem Transport des Materials, sollten die Moden mit höchstem Energiegewinn am schnellsten wachsen. Dies ist beispielsweise beim Kontakt des Festkörpers mit seiner Schmelze der Fall. In diesem Fall ist die Zeitentwicklung des Höhenfeldes h durch

$$\dot{h} \sim -\mu[h]$$

bestimmt. Damit ist $h_k(t) \sim \exp(\lambda t)h_k(0)$ mit

$$\lambda \sim -(\gamma k^2 - \alpha|k|) \quad (8.1)$$

und die Moden mit $0 < k < k_c$ wachsen exponentiell. Die Moden mit $k > k_c$ werden hingegen gedämpft. Die Mode mit $k = k_c/2$ wächst am schnellsten, da für sie λ maximal wird, siehe Abbildung 8.3.

Betrachtet man jedoch Transportprozesse wie die Diffusion, so ist die am schnellsten wachsende Mode näher bei k_c , da langwellige Moden einen Transport von Material über größere Distanzen erfordern. Die Bewegungsgleichung des erhaltenen Höhenfeldes ist dann durch

$$\dot{h} \sim -\frac{\partial^2 \mu}{\partial x^2}$$

gegeben und das Spektrum ist modifiziert:

$$\lambda \sim -k^2(\gamma k^2 - \alpha|k|). \quad (8.2)$$

Die Stabilitätsschwelle k_c bleibt erhalten, nur die Stelle des Maximums verschiebt sich auf $\frac{3}{4}k_c$, siehe Abbildung 8.3.

Durch das in dieser Arbeit entwickelte Modell gelingt es, diese Instabilität im Rahmen eines *Solid-On-Solid*-Modells zu beschreiben. Man ist hierdurch in der Lage, die Instabilität zusätzlich auf mikroskopischer Ebene zu studieren. Abbildung 8.2 zeigt beispielhaft den Einfluss der Instabilität auf eine glatte heteroepitaktische Adsorbatschicht. Der Einfachheit halber wurde hier eine Evaporations-Adsorptions-Kinetik gewählt, die dem Fall aus Gleichung (8.1) entspricht. Hierbei wurde nur die heteroepitaktische elastische Wechselwirkung berücksichtigt.

Es stellt sich die Frage, in welcher Weise eine zusätzliche repulsive Stufenwechselwirkung das Verhalten beeinflusst. Da mit Kapitel 7 die Gleichgewichtseigenschaften des Systems im Prinzip bekannt sind, ließe sich untersuchen, welchen Einfluss es auf die Dynamik der Instabilität hat, ob sich die Oberfläche des System ober- oder unterhalb der Aufrauungstemperatur befindet.

Mit einer zusätzlichen lokalen Adsorptionsenergie $V(h)$, welche eine Be- oder Entzerrung des Substrats begünstigt, ließe sich der Einfluss der Schichtdicke auf die Stabilität des Films untersuchen. Die hierzu notwendigen Modifikationen sind unabhängig von den in dieser Arbeit entwickelten Konzepten zu den auftretenden langreichweitigen Wechselwirkungen und in ihrer lokalen Natur unproblematisch. Man ist deshalb unter nur minimalen Änderungen in der Lage, den Einfluss elastischer Effekte auf kohärentes heteroepitaktisches Wachstum, insbesondere die hieraus resultierenden Übergänge zwischen den verschiedenen Wachstumsmoden, namentlich Frank-van der Merve, Volmer-Weber und Stranski-Krastanov, mithilfe von Monte-Carlo-Simulationen zu untersuchen.

8.2 Kinetische Aufrauung

Setzt man eine Oberfläche mit all diesen Effekten einem Depositionsstrom wie in Kapitel 4 aus, so stellt sich die Frage, in welcher Weise die sich entwickelnden Strukturen bei diesem Wachstumsprozess von den elastischen Energiebeiträgen abhängen. Kann man das Wachstum einer heteroepitaktischen Schicht noch mit den herkömmlichen Methoden des *Kinetik Roughening* behandeln, lassen sich Rauigkeit und Korrelationen immer noch durch Skalenfunktionen und kinetische Exponenten beschreiben? Kann beispielsweise die Deposition schnell genug erfolgen, so dass die Reorganisation aufgrund der Grinfeld-Instabilität überdeckt wird? Ändert sich etwas an der Universalitätsklasse des Wachstumsmodells, wenn die auftretenden heteroepitaktischen und/oder homoepitaktischen Stufenwechselwirkungen mit berücksichtigt werden?

Es eröffnen sich eine Vielzahl von Problemen, deren Lösung durch die in dieser Arbeit entwickelten Methoden in greifbare Nähe gerückt sind.

Kapitel 9

Zusammenfassung

Das Ziel dieser Arbeit war es, den Einfluss langreichweitiger elastischer Effekte an Kristalloberflächen oder epitaktischen Schichten analytisch und mithilfe von Monte-Carlo-Simulationen aufzuklären. Dazu war es zunächst notwendig, neue Ansätze zur Beschreibung des elastischen Problems zu entwickeln und diese Form der Beschreibung so zu reduzieren, dass durch die Anwendung besonders effizienter numerischer Verfahren der Aufwand für Monte-Carlo-Simulationen handhabbar wird.

Für hinreichend flache Oberflächen auf einem halbumendlichen System, das heißt für kleine Gradienten des Höhenprofils, konnten die elastischen Effekte auf eine paarweise Wechselwirkung zwischen lokal definierten Eigenschaften von Oberflächenelementen zurückgeführt werden. Hierbei werden sowohl die heteroepitaktische logarithmische Stufenwechselwirkung als auch die homoepitaktische Wechselwirkung durch eine repulsive elastische Dipolwechselwirkung proportional zu r^{-3} berücksichtigt. Im heteroepitaktischen Fall ergibt eine über Teilbereiche der Oberfläche integrierte Dipolwechselwirkung gerade eine logarithmische Stufenwechselwirkung. Das elastische Problem ist damit auf ein System wechselwirkender effektiver „Ladungen“ zurückgeführt, welches durch die lokalen Eigenschaften des Höhenprofils bestimmt ist. Diese „Ladungen“ werden im Folgenden als Verzerrungsladungen bezeichnet. Dem unterschiedlichen Ursprung der auftretenden Wechselwirkungen wird durch zwei Felder von Verzerrungsladungen Rechnung getragen. Das h -Feld beschreibt die Verzerrungsladungen aufgrund des Misfits einer heteroepitaktischen Adsorbatschicht in Bezug auf das Substrat. Die Verzerrungswirkung von Stufenkanten, die sowohl in der Homoepitaxie als auch in der Heteroepitaxie auftritt, wird durch das q -Feld modelliert. Während die Verzerrungsladungen des h -Feldes proportional zur Dicke der heteroepitaktischen Schicht sind, sind die Verzerrungsladungen des q -Feldes entlang von Stufenkanten lokalisiert.

Der für Monte-Carlo-Simulationen überaus wichtige Aspekt dieser Beschreibung durch Verzerrungsladungen ist, dass sich der Energieunterschied zwischen zwei Konfigurationen, welche durch eine lokale Änderung des Höhenfeldes ineinander übergehen, sehr einfach berechnen lässt. Die Änderung der Energie wird in diesem Fall

ausschließlich von den Verzerrungsladungen bestimmt, welche durch die Modifikation der Konfiguration nur lokal verschoben, erzeugt oder vernichtet werden.

Der Aufwand zur Berechnung der Wechselwirkungsenergie dieser Verzerrungsladungen mit der sie umgebenden Konfiguration ist aber auch in diesem einfachen Bild immer noch proportional zur Fläche, das heißt dem Produkt der lateralen Abmessungen des Systems. Erst durch ein auf das Problem zugeschnittenes Multigridverfahren ist es möglich, den Aufwand der Berechnung dieser Energiedifferenzen so weit zu reduzieren, dass der Einsatz von Monte-Carlo-Simulationen für hinreichend große Systeme vertretbar wird.

Das hier auf Basis eines früheren Ansatzes weiterentwickelte Multigrid-Verfahren behandelt die Wechselwirkung zwischen Verzerrungsladungen auf Nachbarplätzen exakt und produziert die richtige Asymptotik der Abstandsabhängigkeit. Die Ordnung des Rechenaufwands wird dabei auf den Logarithmus der Kantenlänge des Systems reduziert. Auch wenn die Wechselwirkung innerhalb dieser Arbeit durch ein skalares Potential gegeben ist, so bereitet es prinzipiell keine Probleme, den bestehenden Ansatz um eine bisher vernachlässigte Winkelabhängigkeit zu erweitern.

Die in dieser Arbeit entwickelten Methoden wurden zunächst auf den Grenzfall des Submonolagenwachstums angewendet. Hierfür reduziert sich das elastische Problem auf eine langreichweitige repulsive r^{-3} -Wechselwirkung zwischen den Adsorbatatomen. Unter fortlaufender Deposition von Adsorbatteilchen auf ein anfänglich unbedecktes Substrat diffundieren einzelne Adsorbatteilchen und formieren sich zu monolagigen Inseln auf der Substratoberfläche. Die Anzahl der Inseln pro Fläche hängt von der Mobilität der einzelnen Adsorbatatome, der Stärke der elastischen Wechselwirkung sowie von der Stärke des Depositionsflusses ab. Die Statistik der Anzahlen von diffundierenden Atomen und unbeweglichen Inseln wird im wechselwirkungsfreien Fall zunächst durch Ratengleichungen beschrieben, welche durch skalentheoretische Überlegungen um elastische Effekte erweitert werden.

Es zeigte sich, dass die Inselbildung durch die repulsive elastische Wechselwirkung behindert wird und sich die Nukleationsphase zu höheren Bedeckungen verschiebt. In dieser Hinsicht hat die repulsive elastische Wechselwirkung zwischen den Atomen dieselbe Wirkung wie ein erhöhter Depositionsfluss. Eine neue Skalenrelation zwischen den drei genannten Systemparametern konnte aufgestellt werden, die das Verhalten für nicht zu große Bedeckungen auf universelle Funktionen zurückführt. Die erhaltenen Resultate sind von besonderer Bedeutung für die Interpretation von experimentellen Daten, da üblicherweise aus gemessenen Inselzahlen auf die Mobilität der Adsorbatatome zurückgeschlossen wird. Aufgrund der Berücksichtigung elastischer Effekte durch der neuen Skalenrelation kommt man zu besseren Abschätzungen für die Diffusionskonstanten von Adsorbatatomen auf einer Kristalloberfläche.

Für tiefe Temperaturen nimmt eine Kristalloberfläche aufgrund der Anisotropie der Oberflächenenergie die Form einer glatten Facette an. Mit steigender Temperatur bilden sich jedoch Inseln und Löcher auf der Facette. Diese zunächst räumlich beschränkten Fluktuationen weichen die Oberfläche allmählich auf. Die makroskopische Dicke der Grenzschicht des Kristalls nimmt zu, bis sie bei einer endlichen Temperatur,

der Aufrauungstemperatur, divergiert. An diesem Punkt geht die Orientierung der Facette verloren. Die Oberfläche ist makroskopisch rau. In lokalen Modellen wird die Skala der Übergangstemperatur dieses thermodynamischen Phasenübergangs allein durch die Stufen- oder Linienenergie festgelegt.

Elastische Verzerrungen führen jedoch zu einer Wechselwirkung proportional zu r^{-2} zwischen den Stufen auf einer Kristalloberfläche. Die Analyse der Gleichgewichtsstruktur einer solchen Oberfläche führt direkt zu der Frage, auf welche Weise eine repulsive Stufenwechselwirkung den an einer facettierten Oberfläche üblicherweise auftretenden thermischen Aufrauungsphasenübergang beeinflusst.

Es zeigt sich, dass abhängig von der Stärke des langreichweitigen Anteils der elastischen Energie die Aufrauungstemperatur der Oberfläche stark erhöht sein kann im Vergleich zu einem Modell, bei dem nur eine aus lokalen Beiträgen bestehende Stufenenergie zum Tragen kommt. Durch eine künstliche Beschränkung der Reichweite der elastischen Wechselwirkung konnte gezeigt werden, dass die Erhöhung der Aufrauungstemperatur nicht ein Effekt ist, der auf der Wirkung der nächsten Nachbarn beruht, sondern dass die Aufrauungstemperatur kontinuierlich mit der Reichweite des Potentials ansteigt. Unter Veränderung der Reichweite des Wechselwirkungspotentials bleiben lokale Energieskalen wie die effektive Linienenergie einer Stufe oder die Anregungsenergie eines Kinks mit einer Variation von maximal 36% nahezu konstant, während sich die Aufrauungstemperatur in der Simulation um einen Faktor 3 ändert.

Bei langreichweitiger Wechselwirkung sorgen starke Antikorrelationen zwischen Stufen dafür, dass eine geringere Anzahl energetisch bevorzugter Konfigurationen existiert. Der für den Phasenübergang verantwortliche, mit der Temperatur anwachsende, entropische Beitrag zur freien Energie des Systems wird verringert. Die Temperatur, ab der die entropischen Effekte das Verhalten des Systems bestimmen, ist folglich höher als im kurzreichweitigen Fall.

Durch die Berücksichtigung elastischer Effekte kommt zu der lokalen Linienenergie der Stufe noch eine weitere energetische Skala hinzu, die Stärke der Wechselwirkung zwischen den Stufen. Ist die Linienenergie viel größer als die Wechselwirkungsenergie zwischen Stufen, befindet man sich im lokalen Grenzfall. Dann wird der Aufrauungsübergang durch die lokale Linienenergie dominiert und die Korrekturen durch elastische Effekte sind klein. Variiert man die Linienenergie der Stufe und die Amplitude der langreichweitigen Stufenwechselwirkung unabhängig voneinander, so lassen sich Abweichungen vom lokalen Grenzfall dominanter Linienenergie untersuchen. Dies ist im Vergleich zu einer Variation der Reichweite der Wechselwirkungen der physikalisch relevantere Fall, da sich die Reichweite im Experiment nicht künstlich beschränken lässt. Es stellt sich heraus, dass die Abweichungen vom lokalen Grenzfall einem Skalengesetz gehorchen, siehe Gleichung (7.41). Für starke elastische Wechselwirkungen kann die Aufrauungstemperatur der Oberfläche auch um mehr als einen Faktor 3 gegenüber dem lokalen Grenzfall erhöht sein. Ein Vergleich zu quantenmechanischen Rechnungen an Si-Oberflächen zeigt, dass für bestimmte Oberflächenorientierungen die Aufrauungstemperatur durch elastische Effekte erheblich beeinflusst

wird.

Die Veränderung der Aufrauungstemperatur ist auch deshalb von Bedeutung, weil es für die Kinetik des Kristallwachstums in Abwesenheit von Schraubenversetzungen für kleine treibende Kräfte einen Unterschied macht, ob die Oberfläche rau ist – der Kristall mit rauer Oberfläche wächst schneller. Da der Kristall auch schmelzen kann, ist es von Bedeutung, ob die vorhergesagte Aufrauungstemperatur unterhalb des Schmelzpunktes liegt. Ein Faktor 3 kann die Reihenfolge dieser kritischen Temperaturen leicht ändern, zumal für viele Materialien die Aufrauungstemperatur nur wenige 100 K unterhalb des Schmelzpunktes in der Größenordnung von ~ 1000 K liegt.

Schließlich wurde prinzipiell demonstriert, dass die in dieser Arbeit entwickelten Methoden auch geeignet sind, die elastische Instabilität eines heteroepitaktischen Films auf einem Substrat oder eines unter nicht-hydrostatischer Belastung stehenden Kristalls zu beschreiben. Parallel zur Kontinuumsbeschreibung, deren Gültigkeit üblicherweise für Oberflächen oberhalb des Aufrauungsübergangs angenommen wird, steht somit ein adäquates Modell zu Verfügung, mit dem sich die auftretenden Effekte aus atomarer Sicht analysieren lassen. Zudem ist man in der Analyse nicht an raue Oberflächen gebunden.

Die Anwendungsmöglichkeiten des hier entwickelten Modells sind damit jedoch noch nicht erschöpft. In der verwendeten Form ist man mit minimalen Änderungen in der Lage, den Einfluss elastischer Effekte auf kohärentes heteroepitaktisches Wachstum, insbesondere die hieraus resultierenden Übergänge zwischen den verschiedenen Wachstumsmoden, namentlich Frank-van der Merwe, Volmer-Weber und Stranski-Krastanov, mithilfe von Monte-Carlo-Simulationen zu untersuchen. Auch eine Analyse der kinetischen Aufrauung der Oberfläche unter Deposition von mehr als einer Adsorbatlage ist leicht zu bewerkstelligen.

Anhang A

Clusteranalyse in hochdimensionalen Räumen

Aus den Erfahrungen mit den in Kapitel 4 behandelten Clusterstatistiken hat sich eine industrielle Kooperation mit der Firma Grüenthal mbH ergeben, bei der es um Fragen im Zusammenhang mit *Data-Mining* ging. Insbesondere ging es um die Bildung von geeigneten Clusterstrukturen in hochdimensionalen Räumen.

In der Physik sind typischerweise nur zwei oder drei Raumdimensionen relevant. Will man beispielsweise die Anzahl der Cluster auf einer Substratoberfläche ermitteln, siehe Kapitel 4, ist dies mit einer Variante des Hoshen-Kopelman-Algorithmus [98] sehr effizient möglich. Der Abstandsbegriff ist in diesen Räumen eindeutig definiert und die nötigen Informationen sind auf einer hinreichenden Anzahl von Punkten im Raum gegeben, um über den restlichen Raum eine gute Vorhersage zu treffen.

Diese Voraussetzungen sind in hochdimensionalen Räumen im Allgemeinen nicht erfüllt. Im konkreten Fall liegen Beobachtungen über einem 100- bis 200-dimensionalen Raum vor. Dabei können einige Raumdimensionen diskret, andere wiederum kontinuierlich sein. Allein die Frage der Normierung der verschiedenartigen Raumdimensionen zeigt, dass die Metrik des Raumes a priori keineswegs eindeutig festgelegt ist.

Teilt man jede der Koordinaten dieses Raumes in nur zwei Abschnitte, so entstehen durch diese Unterteilung bei einem hundert-dimensionalen Raum etwa 10^{30} hochdimensionale Zellen, über die eine Entscheidung getroffen werden muss, ob sie Teil des Clusters sind. Um den Raum durch Beobachtungen abzudecken benötigt man pro Zelle eine Beobachtung. Da die Zugehörigkeit zum Cluster einem Bit Information entspricht, benötigt man einen Datenspeicher mit einer Kapazität von mehr als 10^{20} Gigabyte. Tatsächlich liegen in aller Regel aber nur mehrere 10^4 bis 10^6 Beobachtungen vor. Auch wenn diese Zahl groß erscheinen mag, sie reicht nicht aus, um einen hundert-dimensionalen Raum zu füllen.

Für alle denkbaren Fälle ist die Datenlage nicht ausreichend um einen hochdimensionalen Raum mehr als sehr dünn zu besetzen. Diese Probleme erfordern damit andere

Konzepte, als sie in der Physik üblich sind. Einen möglichen Ansatz wollen wir im Folgenden kurz umreißen. Auf spezifische Details kann jedoch nicht eingegangen werden, da sie der Vertraulichkeit unterliegen.

Es ist dabei essenziell, dass keine Karte des Raumes angelegt wird, sondern dass bei der Vorhersage, ob ein beliebiger Raumpunkt zum Cluster gehört, direkt von den vorliegenden Beobachtungen ausgegangen wird. Der Einfachheit halber betrachten wir nur eine Unterscheidung zwischen zwei Klassen A und B – das entspricht der Voraussage, ob ein Raumpunkt X zu irgendeinem Cluster im Raum gehört (Klasse A) oder nicht (Klasse B).

Mit einem geeigneten Ähnlichkeitsmaß $\varphi(X, Y)$ zwischen zwei Raumpunkten X und Y lassen sich Indikatorfunktionen definieren, die ein Maß für die Zugehörigkeit zu einer Klasse darstellen.

$$q_A(X) = \sum_{Y \in A} \varphi(Y, X)$$

ist dann ein Maß für die Zugehörigkeit des Punktes X zur Klasse A . Die Summe läuft über alle Elemente Y aus der Klasse A . Analog ist das Maß

$$q_B(X) = \sum_{Y \in B} \varphi(Y, X)$$

für die Zugehörigkeit zur Klasse B definiert. Ausgehend von diesen Größen lässt sich eine Wahrscheinlichkeit

$$P_{A/B}(X) = \frac{q_{A/B}(X)}{q_A(X) + q_B(X)}$$

dafür definieren, dass X zur Klasse A beziehungsweise B gehört. Nimmt $P_A(X)$ einen Wert an, der größer ist als ein festzulegender Akzeptanzlevel – im einfachsten Fall $P_A(X) > 0.5$ – gehört der Raumpunkt X zur Klasse A und ist ein Teil des Clusters. Der numerische Aufwand für diese Vorhersage ist proportional zur Anzahl der vorhandenen Beobachtungen, das heißt zur Anzahl der Elemente in den Klassen A und B und zum Aufwand der Auswertung des Ähnlichkeitsmaßes $\varphi(X, Y)$, der üblicherweise proportional zur Dimension des Raumes ist. Das so definierte Wahrscheinlichkeitsmaß stellt eine sehr effiziente Möglichkeit der Interpolation zwischen schon bekannten Raumpunkten in hochdimensionalen Räumen zur Verfügung.

Streng genommen ist bei dieser Klasse von Problemen noch nicht einmal die Dimensionalität eindeutig gegeben. Im Prinzip steht eine sehr große Anzahl von Raumdimensionen zur Verfügung, aus der die wichtigen Dimensionen ausgewählt werden müssen. Sind bei physikalischen Problemen die Symmetrien bekannt, so kann eine Reduktion der Dimensionalität meist systematisch erfolgen. Charakteristisch für die hier betrachteten Fragestellungen ist jedoch, dass man a priori nicht weiß, ob eine Dimension wichtig für die Beschreibung des Systems ist oder nicht.

Standardverfahren der Statistik, wie zum Beispiel die Faktor- oder Hauptkomponentenanalyse, versuchen über die Eigenwerte und Eigenvektoren der Korrelationsmatrix eine Dimensionsreduktion durchzuführen. Man erreicht hierdurch jedoch meist

nur, dass die Gesamtheit der Beobachtungspunkte durch den Raum mit reduzierter Dimensionalität gut beschrieben wird. Dass jedoch dieser Satz von Dimensionen dazu geeignet ist, das Problem der Klassenzugehörigkeit zu beschreiben, ist nicht garantiert. Durch die Größe der Korrelationsmatrix und die geringe Anzahl der Beobachtungen sind zudem die Eigenvektoren und Eigenwerte mit großen statistischen Fehlern behaftet. Aus diesen Gründen erscheinen diese Verfahren nur dazu geeignet, Dimensionen, die unter dem Deckmantel eines anderen Namens mehrfach vorhanden sind, zu eliminieren.

Ein von uns in diesem Zusammenhang verfolgter Ansatz besteht darin, die Aussagekraft jeder einzelnen Dimension für sich allein bezüglich der Klassenunterscheidung zwischen A und B zu testen. Ein mögliches Maß hierfür kann sein, ob sich die eindimensionalen Verteilungen der Stichproben A und B signifikant unterscheiden. Sind die Verteilungen identisch, so kann man darauf verzichten, diese Dimension zur Beschreibung des Systems heranzuziehen.

Aus der Kombination dieser Methoden entstand ein Programm, das nun von der Firma Grünenthal aus einer Web-basierten Data-Mining-Plattform heraus genutzt wird.

Literaturverzeichnis

- [1] O. TATARU, F. FAMILY und J. G. AMAR: *Post-deposition island growth with long-range interactions*. Physica A, 273:231, 1999.
 - [2] L. D. LANDAU und E. M. LIFSCHITZ: *Elastizitätstheorie*, Band 7 der Reihe *Lehrbuch der Theoretischen Physik*. Akademie Verlag, 4. Auflage, 1991.
 - [3] H. T. JOHNSON und L. B. FREUND: *Mechanics of coherent and dislocated island morphologies in strained epitaxial material systems*. J. Appl. Phys., 81:6081, 1997.
 - [4] E. PEHLKE, N. MOLL, A. KLEY und M. SCHEFFLER: *Shape and stability of quantum dots*. Appl. Phys. A, A65:525, 1997.
 - [5] D. E. JESSON, G. CHEN, K. M. CHEN und S. J. PENNYCOOK: *Self-limiting growth of strained faceted islands*. Phys. Rev. Lett., 80:5156, 1998.
 - [6] L. G. WANG, P. KRATZER, M. SCHEFFLER und N. MOLL: *Formation and stability of self-assembled coherent islands in highly mismatched heteroepitaxy*. Phys. Rev. Lett., 82:4042, 1999.
 - [7] L. G. WANG, P. KRATZER, N. MOLL und M. SCHEFFLER: *Size, shape, and stability of InAs quantum dots on the GaAs(001) substrate*. Phys. Rev. B, 62:1897, 2000.
 - [8] Q. K. K. LIU, N. MOLL und M. SCHEFFLER: *Equilibrium shapes and energies of coherent strained InP islands*. Phys. Rev. B, 60:17008–17015, 1999.
 - [9] J. TERSOFF und R. M. TROMP: *Shape transition in growth of strained islands: Spontaneous formation of quantum wires*. Phys. Rev. Lett., 70:2782–2785, 1993.
 - [10] J. TERSOFF und F. K. LEGOUES: *Competing relaxation mechanisms in strained layers*. Phys. Rev. Lett., 72:3570–3573, 1994.
 - [11] I. DARUKA, J. TERSOFF und A.-L. BARABÁSI: *Shape Transition in Growth of Strained Islands*. Phys. Rev. Lett., 82:2753, 1999.
 - [12] B. J. SPENCER und J. TERSOFF: *Equilibrium Shapes and Properties of Epitaxially Strained Islands*. Phys. Rev. Lett., 79(24):4858–4861, 1997.
-

- [13] H. GAO: *Stress concentration at slightly undulating surfaces*. J. Mech. Phys. Solids, 39:443, 1991.
 - [14] L. B. FREUND: *Evolution of roughness on the surface of a strained elastic material due to stress-driven surface diffusion*. Acta Mechanica Sinica, 10:16, 1994.
 - [15] L. B. FREUND: *Evolution of waviness on the surface of a strained elastic solid due to stress-driven diffusion*. Int. J. Solids Structures, 32:911, 1995.
 - [16] V. I. MARCHENKO und A. Y. PARSHIN: *Elastic properties of crystal surfaces*. Sov. Phys. JETP, 52:129, 1980.
 - [17] A. F. ANDREEV und Y. A. KOSEVICH: *Capillary phenomena in the theory of elasticity*. Sov. Phys. JETP, 54:761, 1981.
 - [18] P. PEYLA, A. VALLAT, C. MISBAH und H. MÜLLER-KRUMBHAAR: *Elastic Interaction between Surface Defects in Thin Layers*. Phys. Rev. Lett., 82:787–790, 1999.
 - [19] P. PEYLA, A. VALLAT und C. MISBAH: *Elastic interaction between defects on a surface*. J. Cryst. Growth, 201/202:97–100, 1999.
 - [20] P. KERN und P. MÜLLER: *Elastic relaxation of coherent epitaxial deposits*. Surf. Sci., 1997:103–133, 1997.
 - [21] Y. H. XIE, G. H. GILMER, C. ROLAND, P. J. SILVERMAN, S. K. BURATTO, J. Y. CHENG CHENG, E. A. FITZGERALD, A. R. KORTAN, S. SCHUPPLER, M. A. MARCUS und P. H. CITRIN: *Semiconductor Surface Roughness: Dependence on Sign and Magnitude of Bulk Strain*. Phys. Rev. Lett., 73:3006, 1994.
 - [22] T. A. WITTEN und L. M. SANDER: *Diffusion-Limited Aggregation, a Kinetic Critical Phenomenon*. Phys. Rev. Lett., 47:1400, 1981.
 - [23] P. MEAKIN, R. C. BALL, P. RAMANLAL und L. M. SANDER: *Structure of large two-dimensional square-lattice diffusion-limited aggregates: Approach to asymptotic behavior*. Phys. Rev. A, 35(12):5233–5239, 1987.
 - [24] P. MEAKIN: *Universality, nonuniversality, and the effects of anisotropy on diffusion-limited aggregation*. Phys. Rev. A, 33:3371–3382, 1986.
 - [25] P. OSSADNIK: *Multiscaling analysis of large-scale off-lattice DLA*. Physica A, 176:454–462, 1991.
 - [26] D. E. PLATT und F. FAMILY: *Exact relationship between the radius of gyration and the density-density correlation function: application to diffusion limited aggregation*. Physica A, 163:433–439, 1990.
 - [27] L. A. TURKEVICH und H. SCHER: *Occupancy-probability scaling in diffusion-limited aggregation*. Phys. Rev. Lett., 55(9):1026–1029, 1985.
-

-
- [28] P. MEAKIN und L. M. SANDER: *Comment on "Active Zone of Growing Clusters: Diffusion-Limited Aggregation and the Eden Model"*. Phys. Rev. Lett., 54:2053, 1985.
- [29] CHI-HANG LAM: *Finate-size effects in diffusion-limited aggregation*. Phys. Rev. E, 52(3):2841–2847, 1995.
- [30] B. B. MANDELBROT und C. J. G. EVERTSZ: *Multifractality of the harmonic measure on fractal aggregates, and extended self-similarity*. Physica A, 177:386–393, 1991.
- [31] J. STEINBRECHER, H. MÜLLER-KRUMBHAAR, E. BRENER, C. MISBAH und P. PEYLA: *Fractal growth of epitaxial surface clusters with elastic interaction*. Phys. Rev. E, 59(5):5600–5605, 1999.
- [32] F. GUTHEIM: *Cluster und Stufenwachstum unter elastischer Verspannung*. Diplomarbeit, RWTH-Aachen, 1999.
- [33] MAKIO UWABA und YUKIO SAITO: *Aggregation growth in a gas of finite density: Velocity selection via fractal dimension of diffusion-limited aggregation*. Phys. Rev. B, 40:4716–4723, 1989.
- [34] H. MÜLLER-KRUMBHAAR, F. GUTHEIM, R. SPATSCHEK und E. BRENER: *Elastic effects on growth processes*. Appl. Surf. Sci., 182:265–271, 2001.
- [35] F. GUTHEIM, H. MÜLLER-KRUMBHAAR, E. BRENER und C. MISBAH: *Epitaxial Growth with Elastic Interaction: Layer and Cluster Growth*. In: *Stochastic Processes in Physics, Chemistry, and Biology*, Band 557 der Reihe *Lecture Notes in Physics*, Seiten 484–495. Springer, 2000.
- [36] F. GUTHEIM, H. MÜLLER-KRUMBHAAR und E. BRENER: *Epitaxial growth with elastic interaction: Submonolayer island formation*. Phys. Rev. E, 63, 2001.
- [37] Y. SAITO: *Statistical Physics of Crystal Growth*. World Scientific, 1996.
- [38] R. NÖTZEL, J. TEMMYO und T. TAMAMURA: *Self-organized growth of strained InGaAs quantum disks*. Nature, 369:131, 1994.
- [39] R. JULLIEN, J. KERTESZ, P. MEAKIN und D. E. WOLF: *Surface Disordering: Growth, Roughening and Phase Transitions*. Nova Science Publ., 1993.
- [40] J. HARDY und R. BULLOUGH: *Point Defect Interactions in Harmonic Cubic Lattices*. Phil. Mag., 15:237, 1967.
- [41] K. H. LAU und W. KOHN: *Elastic interaction of two atoms adsorbed on a solid surface*. Surface Science, 65:607, 1977.
-

- [42] F. WESTERHOFF, L. BRENDL und D. E. WOLF: *Layer-by-Layer Pattern Propagation and Pulsed Laser Deposition*. In: P. ENTEL und D. E. WOLF (Herausgeber): *Structure and Dynamics of Heterogeneous Systems*. World Scientific, Singapore, 2000.
 - [43] B. HINNEMANN, H. HINRICHSSEN und D. E. WOLF: *Unusual Scaling for Pulsed Laser Deposition*. Phys. Rev. Lett., 87:135701, 2001.
 - [44] H. JENNICHES, M. KLAUA, H. HOCHÉ und J. KIRSCHNER: *Comparison of pulsed laser deposition and thermal deposition: Improved layer-by-layer growth of Fe/Cu(111)*. Appl. Phys. Lett., 69:3339, 1996.
 - [45] H. HUANG, G.H. GILMER und T. DIAZ DE LA RUBIA: *An atomistic simulator for thin film deposition in three dimensions*. J. Appl. Phys., 84:3636, 1998.
 - [46] O. TATARU, F. FAMILY und J. AMAR: *Effects of island geometry in postdeposition island growth*. Phys. Rev. B, 62:13129, 2000.
 - [47] J. SCHNAKENBERG: *Algorithmen in der Quantentheorie und Statistischen Physik*. Zimmermann-Neufang, Ulmen, 1995.
 - [48] J. G. AMAR, F. FAMILY und PUI-MAN LAM: *Dynamic scaling of the island-size distribution and percolation in a model of submonolayer molecular-beam epitaxy*. Phys. Rev. B, 50:8781–8797, 1994.
 - [49] J. VILLAIN und A. PIMPINELLI: *Terrace sizes in molecular beam epitaxy*. J. Phys. I France, 2:2107–2121, 1992.
 - [50] LEI-HAN TANG: *Island formation in submonolayer epitaxy*. J. Phys. I France, 3:935–950, 1993.
 - [51] F. S. HENYEY und V. SESHADRI: *On the number of distinct sites visited in 2D lattices*. J. Chem. Phys., 76:5530–5534, 1982.
 - [52] M. C. BARTELT und J. W. EVANS: *Scaling analysis of diffusion-mediated island growth in surface adsorption processes*. Phys. Rev. B, 46:12675, 1992.
 - [53] G. S. BALES und D. C. CHRZAN: *Dynamics of irreversible island growth during submonolayer epitaxy*. Phys. Rev. B, 50:6057–6067, 1994.
 - [54] R. J. ASARO und W. A. TILLER: *Interface morphology development during stress corrosion cracking. I. Via surface diffusion*. Metallurgical Transactions A, 3:1789, 1972.
 - [55] M. A. GRINFELD: *Instability of the separation boundary between a non-hydrostatically stressed elastic body and a melt*. Doklady Akademii Nauk SSSR, 290:1358, 1986.
 - [56] V. M. KAGANER und K. H. PLOOG: *Energies of strained vicinal surfaces and strained islands*. Phys. Rev. B, 64, 2001.
-

-
- [57] TZE WING POON, SIDNEY YIP, PAUL S. HO und FARID F. ABRAHAM: *Equilibrium structures of Si(100) stepped surfaces*. Phys. Rev. Lett., 65(17):2161–2164, 1990.
- [58] TZE WING POON, SIDNEY YIP, PAUL S. HO und FARID F. ABRAHAM: *Ledge interactions and stress relaxations on Si(001) stepped surfaces*. Phys. Rev. B, 45(7):3521–3531, 1992.
- [59] W. H. YANG und D. J. SROLOVITZ: *Cracklike surface instabilities in stressed solids*. Phys. Rev. Lett., 71:1593–1596, 1993.
- [60] W. K. BURTON und N. CABRERA: *Crystal Growth and Surface Structure. Part I*. Disc. Faraday Soc., 5:33–39, 1949.
- [61] W. K. BURTON, N. CABRERA und F. C. FRANK: *The Growth of Crystals and the Equilibrium Structure of their Surfaces*. Phil. Trans. Roy. Soc., 243A:299, 1951.
- [62] J. M. KOSTERLITZ und D. J. THOULESS: *Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems*. J. Phys. C, 6(7):1181–1203, 1973.
- [63] S. T. CHUI und J. D. WEEKS: *Phase transition in the two-dimensional Coulomb gas, and the interfacial roughening transition*. Phys. Rev. B, 14(11):4978–4982, 1976.
- [64] J. M. KOSTERLITZ: *The critical properties of the two-dimensional xy model*. J. Phys. C, 7(6):1046–1060, 1974.
- [65] J. M. KOSTERLITZ: *The d-dimensional Coulomb gas and the roughening transition*. J. Phys. C, 10(19):3753–3760, 1977.
- [66] TAKAO OHTA und KYOZI KAWASAKI: *Renormalization Group Theory of the Interfacial Roughening Transition*. Prog. Theor. Phys., 60(2):365–379, 1978.
- [67] H. J. F. KNOPS und L. W. J. OUDEN: *Momentum space renormalization for the sine-Gordon model*. Physica A, 103:597–608, 1980.
- [68] J. V. JOSE, L. P. KADANOFF, S. KIRKPATRICK und D. R. NELSON: *Renormalization, vortices, and symmetry-breaking perturbations in the two-dimensional planar model*. Phys. Rev. B, 16(3):1217, 1977.
- [69] L. P. KADANOFF: *Multicritical behavior at the Kosterlitz-Thouless critical point*. Annals of Physics, 120:39, 1979.
- [70] D. J. AMIT, Y. Y. GOLDSCHMIDT und S. GRINSTEIN: *Renormalisation group analysis of the phase transition in the 2D Coulomb gas, Sine-Gordon theory and XY-model*. J. Phys. A, 13:583, 1980.
-

- [71] J. FRÖLICH und T. SPENCER: *The Kosterlitz-Thouless Transition in Two-Dimensional Abelian Spin Systems and the Coulomb Gas*. Commun. Math. Phys., 81:527–602, 1981.
 - [72] M. HASENBUSCH, M. MARCU und K. PINN: *High precision renormalization group study of the roughening transition*. Physica A, 208:124–161, 1994.
 - [73] A. HAZAREESING und J. P. BOUCHAUD: *Functional renormalization description of the roughening transition*. European Physical Journal B, 14:713–724, 2000.
 - [74] T. EMIG und T. NATTERMANN: *Roughening transition of interfaces in disordered systems*. Phys. Rev. Lett., 81:1469, 1998.
 - [75] Z. JIANG und C. EBNER: *Dynamical Monte Carlo study of crystal growth in a solid-on-solid model*. Phys. Rev. B, 40:4833, 1989.
 - [76] J. D. WEEKS: *The Roughening Transition*. In: T. RISTE (Herausgeber): *Ordering in Strongly Fluctuating Condensed Matter Systems*, Seiten 293–317, New York, 1980. Plenum Press.
 - [77] P. NOZIÈRES: *Shape and Growth of Crystals*. In: GODRÈCHE (Herausgeber): *Solids far from equilibrium*, Collection Aléa Saclay, Kapitel 1. Cambridge University Press, Cambridge, 1992.
 - [78] A. P. YOUNG: *On the theory of the phase transition in the two-dimensional planar spin model*. J. Phys. C, 11:L453–L455, 1978.
 - [79] P. M. CHAIKIN und T. C. LUBENSKY: *Principles of condensed matter physics*, Kapitel 4.9. Cambridge University Press, Cambridge, 1995.
 - [80] P. G. DE GENNES und J. PROST: *The Physics of Liquid Crystals*, Kapitel 10.2.6. Oxford University Press, New York, 2. Auflage, 1993.
 - [81] J. B. MAXSON, D. E. SAVAGE, FENG LIU, R. M. TROMP, M. C. REUTER und M. G. LAGALLY: *Thermal Roughening of a Thin Film: A New Type of Roughening Transition*. Phys. Rev. Lett., 85(10):2152–2155, 2000.
 - [82] E. V. VAKARIN und J. P. BADIALI: *Roughening transition in the presence of adsorbates*. Phys. Rev. B, 60(3):2064–2067, 1999.
 - [83] F. GUTHEIM, H. MÜLLER-KRUMBHAAR, E. BRENER und V. KAGANER: *Thermal roughening of a solid-on-solid model with elastic interaction*. Phys. Rev. B, 67:195404, 2003.
 - [84] ANOOP PRASAD und PETER B. WEICHMANN: *Layering transition, disordered flat phases, reconstruction, and roughening*. Phys. Rev. B, 57(8):4900–4938, 1998.
-

-
- [85] PAUL J. M. BASTIAANSEN und HUBERT J. F. KNOPS: *Roughening and preroughening in the six-vertex model with an extended range of interaction*. Phys. Rev. B, 53(1):126–135, 1996.
- [86] E. A. JAGLA, S. PRESTIPINO und E. TOSATTI: *Surface-Melting-Induced Preroughening*. Phys. Rev. Lett., 83(14):2753–2756, 1999.
- [87] JAE DONG NOH und MARCEL DEN NIJS: *Preroughening transitions in a model for Si(001)- and Ge(001)-type crystal surfaces*. J. Phys. A, 30:7375–7384, 1997.
- [88] DONALD L. WOODRASKA und JOHN A. JASZCZAK: *Roughening and Preroughening of Diamond-Cubic {111} Surfaces*. Phys. Rev. Lett., 78(2):258–261, 1997.
- [89] SANTI PRESTIPINO, GIUSEPPE SANTORO und TOSATTI ERIO: *Preroughening, Diffusion, and Growth of a fcc(111) Surface*. Phys. Rev. Lett., 75(24):4468–4471, 1995.
- [90] MARCEL DEN NIJS: *Preroughening of Crystal Surfaces and Energy Differences between Inside and Outside Corners*. Phys. Rev. Lett., 64(4):435–438, 1990.
- [91] GIORGIO MAZZEO, GIANCARLO JUG, ANDREA C. LEVI und ERIO TOSATTI: *Roughening and preroughening in nonreconstructed fcc(110) surfaces: A Monte Carlo study*. Phys. Rev. B, 49(11):7625–7638, 1994.
- [92] Y. SAITO und H. MÜLLER-KRUMBHAAR: *Two-dimensional Coulomb gas: A Monte Carlo study*. Phys. Rev. B, 23(1):308–315, 1981.
- [93] JEAN LAPUJOLADE: *The roughening of metal surfaces*. Surf. Sci. Rep., 20:191–249, 1994.
- [94] H. VAN BEIJEREN und I. NOLDEN: *The Roughening Transition*. In: W. SCHOMMERS und P. VON BLANCKENHAGEN (Herausgeber): *Structure and Dynamics of Surfaces II*, Seiten 259–300. Springer, Berlin, 1987.
- [95] S. KODIYALAM, K. E. KHOR, N. C. BARTELT und S. DAS SARMA: *Energetics of vicinal Si(111) steps using empirical potentials*. Phys. Rev. B, 51(8):5200–5213, 1995.
- [96] G. SCHULZE ICKING-KONERT, M. GIESEN und H. IBACH: *Novel Method for the Experimental Determination of Step Energies*. Phys. Rev. Lett., 83(19):3880–3883, 1999.
- [97] T. L. EINSTEIN, HOWARD L. RICHARDS, SAUL D. COHEN und O. PIERRE-LOUIS: *Terrace-width distributions and step-step repulsion on vicinal surfaces: symmetries, scaling, simplifications, subtleties, and Schrödinger*. Surf. Sci., 493:460–474, 2001.
-

- [98] J. HOSHEN und R. KOPELMAN: *Percolation and cluster distribution. I. Cluster multiple labeling technique and critical concentration algorithm*. Phys. Rev. B, 14:3438, 1976.
-

Veröffentlichungen

Teile der Arbeit wurden an folgenden Stellen veröffentlicht.

- F. GUTHEIM, H. MÜLLER-KRUMBAAR, E. BRENER und C. MISBAH: *Epitaxial Growth with Elastic Interaction: Layer and Cluster Growth*. In: *Stochastic Processes in Physics, Chemistry, and Biology*, Band 557 der Reihe *Lecture Notes in Physics*, Seiten 484–495. Springer, 2000.
 - H. MÜLLER-KRUMBHAAR, F. GUTHEIM, R. SPATSCHEK und E. BRENER: *Elastic effects on growth processes*. *Appl. Surf. Sci.*, 182:265–271, 2001.
 - F. GUTHEIM, H. MÜLLER-KRUMBHAAR und E. BRENER: *Epitaxial growth with elastic interaction: Submonolayer island formation*. *Phys. Rev. E*, 63, 2001.
 - F. GUTHEIM, H. MÜLLER-KRUMBHAAR, E. BRENER und V. KAGANER: *Thermal roughening of a solid-on-solid model with elastic interaction*. *Phys. Rev. B*, 67:195404, 2003.
-

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. Müller-Krumbhaar für die Vergabe der außerordentlich interessanten und vielseitigen Themenstellung sowie die umfassende Betreuung in allen Phasen der Arbeit. Besonders dankbar bin ich für seine Bereitschaft, sich allen dringlichen Problemen sofort und pragmatisch anzunehmen.

Herrn Dr. E. Brener danke ich für die zahlreichen Gespräche und die immerwährende Bereitschaft, mich während der gesamten Dissertation mit seinem fachlichen Rat zu unterstützen.

Herrn Prof. Dr. W. Selke gilt mein Dank für sein Bereitschaft, als weiterer Berichter zu fungieren.

Frau Luise Snyders danke ich für die große Hilfsbereitschaft in allen organisatorischen Fragen.

Herrn Dr. V. Kaganer danke ich für die hilfreiche Diskussion über elastische Stufenwechselwirkungen und die angenehme Zusammenarbeit.

Herrn Dr. V. I. Marchenko gilt mein Dank für die wertvollen Vorschläge und Anmerkungen.

Herrn Dr. A. Kless danke ich für die angenehme und interessante Zusammenarbeit im Rahmen des Data-Mining Projektes der Firma Grünenthal.

Ohne sie namentlich aufzuzählen, bedanke ich mich bei den Mitarbeitern des Instituts Theorie III für die angenehme Arbeitsatmosphäre sowie die stetige Hilfsbereitschaft.

Ich danke Herrn Dipl. Phys. Robert Spatschek und Herrn Dr. Roland Rzehak für die zahlreichen Hinweise und Verbesserungsvorschläge zum Manuskript.

Schließlich möchte ich mich bei meinen Eltern für die langjährige tatkräftige Unterstützung bedanken. Insbesondere danke ich ihnen für das gewissenhafte Korrekturlesen der Arbeit.

Forschungszentrum Jülich
in der Helmholtz-Gemeinschaft



Jül-4080
August 2003
ISSN 0944-2952